

Erzeugung hoher Harmonischer an Festkörperoberflächen mit fs-Laserimpulsen

Inaugural-Dissertation

zur

Erlangung des Doktorgrades

der Naturwissenschaften

(Dr. rer. nat)

vorgelegt beim Fachbereich Physik

der Universität-Gesamthochschule-Essen

von

Andreas Orisch

aus Essen

Januar 2000

Tag der mündlichen Prüfung: 21.06.2000

Vorsitzender des Prüfungsausschusses: Prof. Dr. F. Haake

1. Gutachter: Prof. Dr. D. von der Linde

2. Gutachter: Prof. Dr. M. Aeschlimann

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
1.1 Synchrotronstrahlung	1
1.2 Freier Elektronenlaser	2
1.3 Plasma-Röntgenlaser	2
1.4 Erzeugung hoher Harmonischer in Gasen	3
1.5 Erzeugung hoher Harmonischer an der Oberfläche eines Festkörpers . . .	4
1.6 Röntgenlinienstrahlung aus Kurzzeitoberflächenplasmen	5
1.7 Motivation und Übersicht	7
2. Theoretische Modelle und Simulationsrechnungen	9
2.1 Das Modell des oszillierenden Spiegels	9
2.2 Das Dichtestufenmodell	22
2.2.1 Beschreibung als kalte Plasmaflüssigkeit	23
2.2.2 Einzelelektronennäherung	24
2.3 PIC-Simulation	26
3. Die verwendeten Laseranlagen	28
3.1 Aufbau der Ti:Saphir-Laseranlagen	28
3.2 Verfahren zur Bestimmung der Impulseigenschaften	29
3.2.1 Autokorrelationsverfahren	29
3.2.2 Frog-Verfahren	29
3.3 Eigenschaften der Laserimpulse in Palaiseau	30
3.4 Eigenschaften der Laserimpulse an der Universität Essen	30
4. Die durchgeführten Experimente	33
4.1 Der Versuchsaufbau	34
4.1.1 Das verwendete Spektrometer	34
4.1.2 Der Versuchsaufbau	37
4.2 Der Wellenlängenbereich bis 30 nm	42
4.2.1 Plasmaspektren	42

Inhaltsverzeichnis

4.2.2	Emission von hohen Harmonischen	42
4.3	Der Wellenlängenbereich bis 10 nm	47
4.4	Untersuchung der Kohärenz	53
4.4.1	Das Transmissionsexperiment	53
4.4.2	Das Reflexionsexperiment	54
4.5	Bestimmung der Konversionseffizienz	59
4.5.1	Die Hohlkathodenlampe und der CCD-Chip	59
4.5.2	Berechnung der Konversionseffizienz	60
4.6	Experimente mit zeitlich variierendem Vorimpuls	63
4.7	Abhängigkeit vom verwendeten Probenmaterial	67
5.	Zusammenfassung und Ausblick	68
5.1	Ergebnisse der Arbeit	68
5.2	Weitere Experimente	69
5.3	Ausblick	70
	Literaturverzeichnis	72

1. Einleitung

Für Strahlungsquellen mit Wellenlängen im Bereich des kurzwelligen Ultraviolett und weicher Röntgenstrahlung erschließen sich immer neuere Anwendungen. Dabei sind je nach Anwendung verschiedene Eigenschaften der Strahlung von mehr oder weniger großer Bedeutung. Bei holographischen Verfahren, der Röntgenmikroskopie und der Röntgenlithographie ist z.B. die räumliche Kohärenz von großer Bedeutung. Kurze Impulse (im sub-ps-Bereich) sind für zeitaufgelöste Strukturbestimmungen und bei der Photoelektronenspektroskopie an inneren Elektronen wünschenswert. In der Biologie ist eine Wellenlänge im Bereich des sogenannten Wasserfensters (zwischen 2,3 nm und 4,4 nm) notwendig, da dort Kohlenstoff eine relativ hohe Absorption und Wasser eine hohe Transmission aufweist.

Tabelle 1 gibt einen Überblick über vorhandene kohärente Strahlungsquellen im Bereich des kurzwelligen Ultraviolett und des weichen Röntgenbereichs.

Tabelle 1

Strahlungsquelle	minimale Wellenlänge	maximale Energie	Impulsdauer	Repetitionsrate
Synchrotron	30 nm	10^{-9} mJ	einige ps	10^8 Hz
<i>FEL</i> [†] Phase 1	(70 nm)	(0,36 mJ)	(500 fs)	10 Hz
<i>FEL</i> Phase 2	(6,4 nm)	(1,2 mJ)	(100 fs)	10 Hz
Plasma Röntgenlaser	13,5 nm	(bis zu einigen mJ)	< 100 ps	2 Hz
Gasharmonische	2,7 nm	< 1 μ J	< 26 fs	10 Hz
Festkörperharmonische	44 nm*	< 1 μ J	< 100 fs	10 Hz

Kohärente Strahlungsquellen im Bereich des kurzwelligen Ultraviolett und des weichen Röntgenbereichs

[†] *Voraussichtliche Werte, die Phase 1 befindet sich gerade in der Probephase*

* *Stand zu Beginn dieser Arbeit*

Auf die verschiedenen Strahlungsquellen soll hier zunächst kurz eingegangen werden.

1.1 Synchrotronstrahlung

Eine Strahlungsquelle, die u.a. im Bereich der weichen Röntgenstrahlung seit ungefähr 30 Jahren eingesetzt wird, ist das sogenannte Synchrotron, d.h. ein Kreisbahnbeschleuniger für geladene Teilchen [1]. Da jede beschleunigte Ladung elektromagnetische Energie abstrahlt, geben die auf der Kreisbahn bewegten Teilchen (Protonen oder Elektronen) ständig Energie in Form von Strahlung ab. Das Frequenzspektrum der Synchrotronstrahlung ist ein Kontinuum, d.h. es gibt keine einzelnen Spektrallinien. Das Synchrotron eignet sich besonders für Versuche mit sehr hohen Wiederholraten (bis ca. 10^8 Hz) bei relativ geringer Energie.

1.2 Freier Elektronenlaser

Im Gegensatz zu einem „normalen“ Laser erfolgt bei einem Freien-Elektronen-Laser (*FEL*) keine Anregung von Elektronen innerhalb eines Atoms, sondern ein freier Elektronenstrahl, welcher ein Magnetfeld mit abwechselnder Polarität (den sogenannten „Undulator“) durchquert, verstärkt die gewünschte Strahlung. Ein anfangs ungeordneter Elektronenstrahl bekommt durch die Wechselwirkung mit der von ihm selbst erzeugten Undulatorstrahlung eine Dichtemodulation aufgeprägt, was ihn zur Abstrahlung dieser Wellenlänge stimuliert. Bei passender Phasenlage und Wellenlänge zwischen Elektronenstrahl und Strahlungsfeld ist ein mittlerer Energieübertrag vom Elektronenstrahl auf das Strahlungsfeld möglich. Weil dadurch einige Elektronen beschleunigt und andere abgebremst werden, entsteht eine longitudinale Dichtemodulation im Elektronenstrahl. Der Strahldurchmesser der Elektronen muß dabei sehr klein und die Elektronendichte hoch sein. Dadurch war es längere Zeit nicht möglich, innerhalb eines Durchgangs des Elektronenstrahles durch den Undulator eine nennenswerte Verstärkung zu erzielen. Die FEL wurden daher im sogenannten Oszillator-Mode betrieben, bei dem sich das Strahlungsfeld in einem optischen Resonator befindet. Aufgrund der nicht verfügbaren notwendigen Spiegel war man also zunächst auf den Wellenlängenbereich bis 200 nm beschränkt. Für kürzere Wellenlängen muß die Verstärkung innerhalb eines Durchlaufes durch den Undulator erfolgen. Fortschritte in der Beschleuniger-Technologie ermöglichen es heute einen Elektronenstrahl in der gewünschten Qualität zu erzeugen. Um die Undulatorlänge zu beschränken, ist es zusätzlich nützlich mit einem bereits externen Laserstrahlungsfeld zu arbeiten. Der weltweit erste SASE-FEL (*self-amplified spontaneous emission SASE*) entsteht bei DESY in Hamburg [2]. Der derzeitige Entwicklungsstand (Phase I) soll die folgenden Werte für die Strahlungsquelle liefern [3]:

Wellenlänge: 70 nm
Impulslänge: 500 fs
Impulsenergie: 0,36 mJ

Der FEL befindet sich zur Zeit allerdings noch in der Testphase. Der weitere Ausbau der Anlage (Phase II) soll dann zu den nachfolgend genannten Parametern führen:

Wellenlänge: 6,4 nm
Impulslänge: 100 fs
Impulsenergie: 1,2 mJ

1.3 Plasma-Röntgenlaser

Zur Realisierung des Plasma-Röntgenlasers wird mit Hochenergielasern ein stark ionisiertes Plasma mit einigen 100 kJ Laserenergie erzeugt. Bei der Abkühlung des Plasmas

kommt es durch Rekombination freier Elektronen in höhere Anregungszustände zu einer Besetzungsinversion. Mit Hilfe von stimulierter Emission werden so Impulse von einigen mJ Energie erzeugt. Das Fehlen von geeigneten Spiegeln im Röntgenbereich läßt allerdings nur einen Durchlauf durch das aktive Medium zu und beschränkt somit die Verstärkung [4].

Um den Einsatz von Lasergroßanlagen zu vermeiden, verfolgt man in der Forschung Konzepte, die eine Verwendung von kompakten Laseranlagen zulassen. Dabei wurden Linienemissionen bei 46,9 nm [5], 41,8 nm [6], 32,6 nm [7] und 13,5 nm [8] erzeugt, allerdings mit geringerer Energie.

1.4 Erzeugung hoher Harmonischer in Gasen

Eine andere Möglichkeit zur Erzeugung von kohärenter Strahlung im kurzwelligen Bereich ist die Frequenzkonversion von Laserstrahlung in Medien aufgrund nichtlinearer Prozesse. Es werden dabei Vielfache der Lasergrundfrequenz erzeugt, welche man im allgemeinen als Harmonische bezeichnet.

Der Vorteil liegt dabei vor allem auch darin, daß keine komplexen Anlagen wie Speicherringe und kJ-Pumplaser benötigt werden.

Seit einigen Jahren wird mit Erfolg die Erzeugung von höheren Harmonischen in Edelgasen realisiert [9]. Dies wurde vor allem durch den Fortschritt in der Entwicklung der sogenannten T^3 -Laseranlagen (Terawatt-Table-Top) möglich (siehe Kapitel 3). Bei Laserintensitäten im Bereich von 10^{13} W/cm^2 bis 10^{15} W/cm^2 oszillieren die atomaren Elektronen im elektrischen Feld des Lichtimpulses. Die Stärke des elektrischen Feldes aufgrund des eingestrahnten Laserfeldes ist vergleichbar mit dem Coulombfeld im Atom und kann sogar größer werden. Die Oszillationsenergie ist dann größer als die Bindungsenergie. Aufgrund der stark anharmonischen Bewegung im Coulombfeld des Atoms geben die Elektronen beim Übergang in den Grundzustand ihre Energie in Form eines Photons der Energie $n h\nu_0$ ab; n gibt darin die Ordnung der erzeugten Harmonischen an. Die Inversionssymmetrie im Gas führt dazu, daß dabei nur die ungeraden Harmonischen der Lasergrundfrequenz emittiert werden. Die Intensitäten der einzelnen Harmonischen nehmen von den niedrigen Harmonischen zu den Höheren kontinuierlich ab, um dann ein Plateau zu erreichen, ab dem die Intensität der Harmonischen mit der Ordnung im Wesentlichen nicht mehr variiert [10]. Bei der Frequenz entsprechend der Photonenenergie von:

$$h\nu = I_p + 3,17U_p \quad (1.1)$$

endet das Spektrum der Harmonischen mit einem „cut-off“, wobei I_p das Ionisierungspotential des Mediums und U_p das sogenannte pondermotorische Potential ist.

Das pondermotorische Potential beschreibt die mittlere Oszillationsenergie eines Elektrons im Laserfeld und ist gegeben durch:

$$U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega_0^2} \propto I \lambda_0^2 \quad (1.2)$$

Erhöht man die Intensität des Laserstrahles über 10^{16} W/cm^2 , so wird das Edelgas ionisiert. Das erzeugte Plasma führt dann u.a. zu einer Verschlechterung in der Phasenanpassung der erzeugten Harmonischen sowie zu einer Veränderung der Fokussierung. Die Folge ist neben dem Verlust der Kohärenz eine Reduzierung der Konversionseffizienz. Zur Zeit werden Harmonische bis zur 300. Ordnung erzeugt, die maximale Konversionseffizienz liegt bei etwa 10^{-6} [11].

1.5 Erzeugung hoher Harmonischer an der Oberfläche eines Festkörpers

Zur Steigerung der Effektivität bei der Erzeugung höherer Harmonischer erscheint der Übergang zu einem anderen Medium ein geeigneter Weg zu sein, die Probleme bei der Erzeugung in Gasen zu vermeiden. Die Erzeugung hoher Harmonischer mit Hilfe ultrakurzer, intensiver Laserstrahlung an Oberflächen überdichteter Plasmen ist im Gegensatz zur oben erwähnten Erzeugung in Edelgasen noch relativ unerforscht. Für ein überdichtetes Plasma gilt:

$$\omega_p > \omega_0 \quad (1.3)$$

wobei ω_0 die Frequenz des Laserimpulses und

$$\omega_p = \sqrt{\frac{n_e e^2}{m_e \epsilon_0}} \quad (1.4)$$

die Plasmafrequenz eines Plasmas mit der Elektronendichte n_e ist. Wird eine Festkörperoberfläche mit einem intensiven ultrakurzen Laserimpuls (einige 10^{17} W/cm^2) bestrahlt, so wird an der Oberfläche eine dünne Plasmaschicht erzeugt. Bei ultrakurzen Impulsen im Bereich von 10^{-13} s dehnt sich das Plasma während der Wechselwirkung mit dem Laser nur unwesentlich aus. Man erhält ein Plasma, dessen Dichte innerhalb einer sehr kurzen Distanz (wenige nm) von der Festkörperdichte auf Null abfällt.

Erste Experimente wurden bereits 1995 mit Ti:Saphir-Laseranlagen mit Impulsdauern von ungefähr 100 fs durchgeführt. Dabei wurden Harmonische bis zur 7. Ordnung [12] bzw. 15. Ordnung [13] beobachtet. Die Emission erfolgte in spekularer Richtung, d.h. in Richtung des reflektierten Laserstrahles. Bis zum Beginn dieser Arbeit war die 18. Harmonische die maximale nachgewiesene Ordnung bei der Erzeugung mit ultrakurzen Laserimpulsen [14]. Höhere Ordnungen wurden bereits 1981 bei einem Experiment in Los Alamos mit vergleichsweise langen CO_2 -Laserimpulsen nachgewiesen [15, 16]. Die Impulsdauer betrug ca. 2 ns, was bereits während der Einstrahlung des Pumplasers zu

einer merklichen Expansion des Plasmas führt. Die erzeugten Harmonischen wurden dabei in einen weiten Winkelbereich abgestrahlt. Gemessen wurde die 46. Harmonische in einem aufgrund der Laserwellenlänge von $10,8\text{ }\mu\text{m}$ vergleichsweise langwelligem Wellenlängenbereich (230 nm). Ein weiteres Experiment wurde mit einer Impulsdauer von $2,5\text{ ps}$ an einem Nd:Glas-Lasersystem bei einer Wellenlänge von $1,05\text{ }\mu\text{m}$ durchgeführt. Hier wurden Harmonische bis zur 75. Ordnung beobachtet [17]. Aber auch in diesem Experiment wurde die Strahlung in den gesamten Halbraum abgestrahlt. Es wird vermutet, daß zur Erzeugung der Harmonischen in diesem Fall eine lokale Aufsteilung des Dichtegradienten im Plasma durch Einwirkung des Lichtdruckes eine Rolle spielt [18]. Durch die Expansion wird die vormals glatte Oberfläche des Festkörpers gestört, so daß die Emission ungerichtet erfolgt.

Offensichtlich ist zur Erzeugung von räumlich kohärenter Strahlung die Impulsdauer von entscheidender Bedeutung. In der sehr kurzen Wechselwirkungszeit von ca. 100 fs kann man die Ionen des Festkörpers als quasi unbeweglich ansehen. Die durch die Ionisation des Festkörpers entstandenen Elektronen werden daher durch das Laserfeld zur Oszillation um einen sehr steilen Dichtegradienten gezwungen. Diese stark anharmonische Bewegung führt zur Abstrahlung der höheren Harmonischen. Prinzipiell gibt es also keine Beschränkung in der Intensität der verwendeten Laserimpulse. Sogenannte „Particle-In-Cell“ (PIC) Rechnersimulationen sagen zudem eine zunehmende Anzahl sowie eine höhere Konversionseffizienz als in Gasen voraus, wenn die Intensitäten der Laserimpulse in den Bereich von 10^{18} W/cm^2 kommen. Bei dieser Intensität werden relativistische Effekte wirksam, welche eine effizientere Erzeugung von Harmonischen erwarten lassen [19].

1.6 Röntgenlinienstrahlung aus Kurzzeitoberflächenplasmen

Bei der Erzeugung von Harmonischen an Festkörperoberflächen tritt zusätzlich zur Strahlung bei den Harmonischenfrequenzen auch charakteristische Röntgenstrahlung auf. Diese Strahlung ist nicht kohärent, da sie aber für verschiedene Anwendungsbereiche gleichwohl von Interesse ist, soll der Vollständigkeit halber an dieser Stelle kurz darauf eingegangen werden.

Mit der Entwicklung leistungsfähiger Laseranlagen zur Erzeugung ultrakurzer, intensiver Laserimpulse wurde es möglich, elektrische Feldstärken zu erreichen, die im Bereich der inneratomaren Felder liegen. Die bei Bestrahlung einer Oberfläche entstehenden Plasmen emittieren Strahlung im vakuum-ultravioletten Spektralbereich und im Röntgenbereich. Die Absorption der Laserenergie führt zu einer Beschleunigung der durch Ionisation entstandenen freien Elektronen in das Targetmaterial [20,21]. Dort geben die Elektronen aufgrund der Wechselwirkung mit dem Coulombfeld der Atome ihre Energie in Form von Bremsstrahlung wieder ab. Des Weiteren entsteht durch Stoßionisation charakteristische Röntgenstrahlung. Aufgrund der Entstehung ist offensichtlich, daß diese Röntgenlinienstrahlung nicht kohärent ist.

Bei Verwendung der Strahlungsquelle ist es zur Selektion einer Wellenlänge erforderlich

1. Einleitung

Röntgenoptiken zu verwenden, welche allerdings den verwendbaren Raumwinkel und damit die verfügbare Photonenzahl einschränken. Die Impulsdauer dieser Röntgenblitze liegt im Bereich der Laserimpulsdauer und damit im Subpikosekundenbereich. Der Nachweis von solchen extrem kurzen Röntgenimpulsen ist sehr schwierig und kann zur Zeit nur mit den schnellsten Röntgenstreakkameras mit ps-Zeitauflösung abgeschätzt werden [22].

Abbildung 1.1 zeigt ein mit einem Von Hamos-Kristall [23] gemessenes Spektrum der $Si_{K\alpha}$ -Linie, bei 1,49 keV. Gemessen wurde mit einem passiv-modengekoppelten CPM-Farbstofflaser bei einer Energie von 3 mJ und einer Impulsdauer von 100 fs. Auf der zur Detektion verwendeten Kamera ließ sich eine Rate von 150 Photonen pro Laserimpuls nachweisen, was einer Energiekonversion von 10^{-11} an der vom Kristall fokussierten Stelle entspricht.

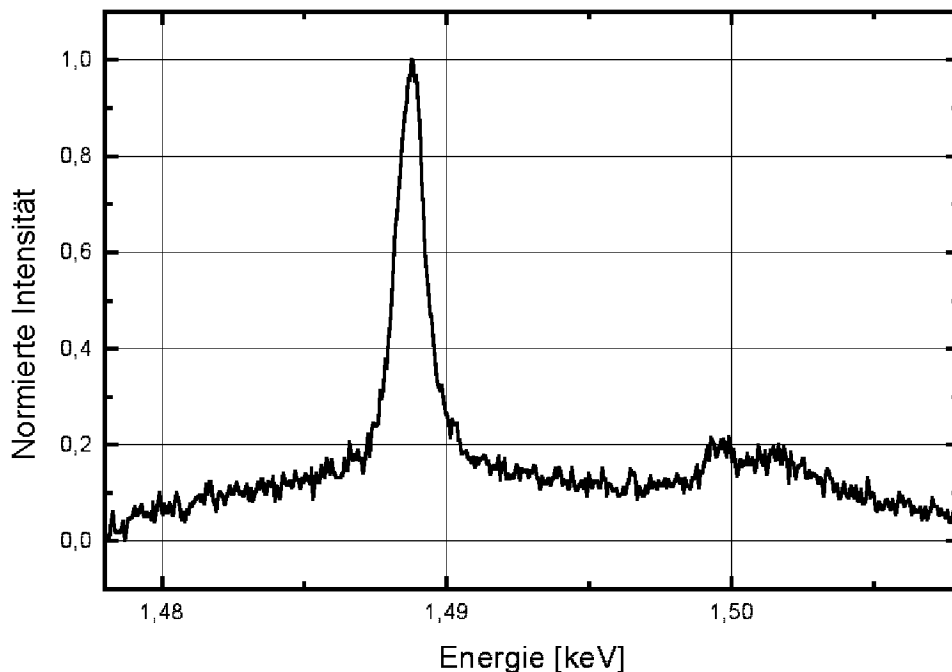


Abbildung 1.1: Spektrum der $Si_{K\alpha}$ -Linie

Durch geeignete Wahl des Targetmaterials lassen sich so ultrakurze, charakteristische Röntgenlinien in einem weiten Spektralbereich erzeugen. Viele chemische und biologische Reaktionen und auch Phasenübergänge führen zu Strukturänderungen in der Materie. Diese Änderungen finden in einem Zeitbereich statt, der vergleichbar mit der Oszillationsperiode der Atome und Moleküle ist, d.h. im Bereich von Femtosekunden bis Piko-sekunden. Röntgenstrahlung, deren Wellenlänge mit den inneratomaren Abständen vergleichbar ist, kann dazu verwendet werden diese Strukturänderungen sichtbar zu machen. Durch die Verwendung ultrakurzer Impulse ist zusätzlich die Möglichkeit der zeitlichen

Verfolgung dieser Abläufe gegeben. Die Entwicklung von Röntgenquellen im Subpikosekundenbereich [20, 24, 25] ermöglichte daher eine Vielzahl von Experimenten in weiten Bereichen der Naturwissenschaft (siehe z.B. [25–30]).

1.7 Motivation und Übersicht

Die Erzeugung kohärenter Strahlung im Bereich des Vakuum-UV und des weichen Röntgenbereiches mit Hilfe von höheren Harmonischen hat aufgrund der Entwicklung im Bereich der Lasertechnologie gute Aussichten, in den nächsten Jahren als Standardquelle genutzt zu werden. Dabei ist die Vermeidung von benötigten Großanlagen von entscheidender Bedeutung. Mit den relativ kompakten T^3 -Laseranlagen besteht die Möglichkeit, eine ebenso kompakte Quelle kohärenter Strahlung im weichen Röntgenbereich in jedem Labor aufzubauen. Die Erzeugung an Festkörperoberflächen bietet zudem den Vorteil, daß es zunächst keine theoretische obere Grenze bei den verwendeten Intensitäten gibt. Der rasante Fortschritt bei der Entwicklung von Lasersystemen läßt erwarten, daß innerhalb der nächsten Jahre immer leistungstärkere und kompaktere Laseranlagen zur Verfügung stehen werden.

Zu Beginn dieser Arbeit war die 18. Ordnung die maximale nachgewiesene Harmonische bei einem Experiment der Essener Arbeitsgruppe an der Ecole Polytechnique, Laboratoire d’Optique Appliquée, Palaiseau. Bei einer Laserwellenlänge von 800 nm entspricht dies einer minimalen Wellenlänge von 44 nm. Ziel der Arbeit war es zunächst mit einem neu aufgebauten Spektrometer mit verbesserter Auflösung in Palaiseau weitere Messungen durchzuführen, um die Erzeugung von Harmonischen zu kürzeren Wellenlängen auszudehnen. Die ersten Deutungen des Effektes der Harmonischen an Festkörperoberflächen Anfang der achtziger Jahre ergaben ein Abbrechen des Spektrums der Harmonischen bei einer oberen Grenzfrequenz, welche durch die Plasmafrequenz gegeben ist [18, 31].

Ein weiterer nicht geklärter Punkt war die Frage nach der räumlichen Kohärenz der erzeugten Harmonischen. Wie bereits erwähnt, wurden die Harmonischen bei Versuchen mit längeren Impulsen in den gesamten Halbraum ausgestrahlt. Beobachtung der 2. Harmonischen sowie die qualitative Messung der 4. Harmonischen von Zhang et al. [32] lassen aber darauf schließen, daß bei der Verwendung von ultrakurzen Laserimpulsen im Subpikosekundenbereich die Emission gerichtet erfolgt.

Wichtig für die Anwendung von Festkörperharmonischen ist die Konversionseffizienz der Laserenergie in die höheren Harmonischen. In [13] wurde bereits eine Abschätzung der Effizienz durchgeführt, welche im Rahmen dieser Arbeit genauer bestimmt werden sollte.

Aufgrund von Rechnersimulationen wird eine förderliche Plasmadichte, bei der die Effektivität der Harmonischen ansteigt, vorhergesagt. Durch Änderung der Targetdichte mittels Verwendung poröser Materialien sowie durch die Einführung eines Vorimpulses wurde die wechselwirkende Plasmaschicht in der Dichte variiert. Außerdem wurde der Einfluß von unterschiedlichen Targetmaterialien auf die Effektivität der Harmonischen

1. Einleitung

untersucht.

Im nächsten Kapitel wird zunächst auf die Theorie der numerischen Simulationsrechnung und der verwendeten physikalischen Modelle eingegangen. Mit Hilfe des einfachen Modells des oszillierenden Spiegels werden Auswahlregeln für die Erzeugung und den Intensitätsverlauf der Harmonischen hergeleitet.

Kapitel 3 beschreibt die verwendeten Laseranlagen und die Eigenschaften der verwendeten Laserimpulse. Bei Spitzenintensitäten bis zu 10^{18} W/cm^2 hat der Impulskontrast einen nicht zu vernachlässigenden Einfluß auf das Ergebnis des Experimentes. Es werden kurz die Möglichkeiten zur Charakterisierung der Laserimpulse angesprochen.

Die Messung der höheren Harmonischen verlangt eine spektrale Aufspaltung der von der bestrahlten Oberfläche reflektierten Strahlung. Zur Dispersion im Wellenlängenbereich des Vakuumultraviolett (VUV) wurde daher ein Spektrometer konstruiert. In Kapitel 4 werden zunächst dieses Spektrometer, der Versuchsaufbau sowie die verwendeten Meßgeräte vorgestellt. Danach folgen die Ergebnisse der Messungen und die Diskussion der Resultate.

In Kapitel 5 erfolgt eine Zusammenfassung sowie ein Ausblick auf weitergehende Experimente.

2. Theoretische Modelle und Simulationsrechnungen

In diesem Kapitel werden zunächst die theoretischen Modelle und die Simulationsrechnungen besprochen. Das Modell des oszillierenden Spiegels soll einen Einblick auf die wesentlichen physikalischen Effekte bieten. Eine genaue theoretische Deutung des Effektes der Erzeugung hoher Harmonischer an Festkörperoberflächen ist noch nicht gelungen. Erste Versuche einer Erklärung orientierten sich an den Arbeiten [18, 31] aus den achtziger Jahren, wobei zur Erzeugung jedoch längere Laserimpulse im Nanosekundenbereich verwendet wurden. In diesen Arbeiten wurde ein Abbrechen des Spektrums der Harmonischen bei einer oberen Grenzfrequenz vorhergesagt. Diese Grenzfrequenz ist durch die Plasmafrequenz gegeben. Fortschritte im theoretischen Verständnis wurden auf diesem Gebiet vor allem durch die Arbeiten [19, 33, 34] gemacht. In der Arbeit von Lichters et al. [19] wurde der Effekt durch die kollektive Oszillation der Elektronen in einem Oberflächenplasma erklärt. Die Arbeit von Gibbon [33] zeigt, daß relativistische Retardierungseffekte eine wesentliche Rolle spielen, was dazu führt, daß keine Frequenzobergrenze bei der Erzeugung an Festkörperoberflächen zu erwarten ist. Stattdessen geht man von einem kontinuierlichen Abfall der Intensität der Harmonischen bei zunehmender Ordnung aus. In einem Intensitätsbereich von $I > 10^{18} \text{ W/cm}^2$ bei $\lambda = 800 \text{ nm}$ treten relativistische Effekte auf, die eine hohe Effizienz bei der Erzeugung hoher Harmonischer ermöglichen sollten.

Aufbauend auf die Arbeiten von Bulanov [35] kann die Erzeugung von Harmonischen hoher Ordnung mit dem einfachen Modell eines oszillierenden Spiegels beschrieben werden [34]. Darin betrachtet man Licht, welches von einem Spiegel reflektiert wird, der eine oscillatorische Bewegung mit der Lichtfrequenz ausführt. Eine einfallende harmonische Welle wird dann bei entsprechend großer Schwingungsamplitude während der Reflexion anharmonisch verformt. Die reflektierte anharmonische Welle kann dann durch eine Fourier-Reihe von höheren Vielfachen der Grundfrequenz beschrieben werden. Starke Verformungen und damit Fourier-Komponenten sehr hoher Ordnung treten dann auf, wenn die Spiegelbewegung mit relativistischen Geschwindigkeiten erfolgt.

2.1 Das Modell des oszillierenden Spiegels

Die im letzten Abschnitt 2.3 behandelten PIC-Verfahren bieten sehr gute Vorhersagen aufgrund numerischer Simulationsrechnungen. Zum allgemeinen Verständnis ist es jedoch erforderlich, die wesentlichen physikalischen Effekte bei der Erzeugung hoher Harmonischer an Festkörperoberflächen anhand von einfachen Modellen zu erklären. Einen relativ einfachen Ansatz bietet das Modell des oszillierenden Spiegels, das in diesem Abschnitt ausführlicher behandelt werden soll. Die Darstellung hält sich dabei im wesentlichen an die Arbeit von D. von der Linde und K. Rzàzewski [34].

Anhand des Modells kann gezeigt werden, daß die Erzeugung der höheren Harmonischen als Phasenmodulation des Lichtes an einer oszillierenden Grenze interpretiert werden kann.

2. Theoretische Modelle und Simulationsrechnungen

Zur Beschreibung wird angenommen, daß eine Lichtwelle mit der Frequenz ω_0 und dem Wellenvektor k_0 aus dem Vakuum auf ein bereits stark überkritisches Plasma fällt, d.h.:

$$\omega_p \gg \omega_0 \quad (2.1)$$

Die Plasmadichte ist für den Halbraum $z < 0$ konstant und fällt für $z > 0$ sehr schnell (d.h. $z < \lambda$) auf Null ab.

Fällt nun eine Lichtwelle aus dem Vakuum auf diese Grenzfläche, so wird der überwiegende Teil der Strahlung an der Oberfläche mit der zur kritischen Dichte gehörenden Plasmafrequenz:

$$\omega_{cr} = \omega_0 \quad (2.2)$$

reflektiert.

Aufgrund der starken elektromagnetischen Felder der Lichtwelle kommt es nun zu einer kollektiven Bewegung der Elektronen und somit zu einer Elektronendichteschwankung. Da der Laserimpuls sehr kurz ist, wird die Bewegung der Ionen vernachlässigt. Aus diesem Grund behandelt man die Ionen als statische, positive Hintergrundladung. Details in der Änderung des Elektrondichteprofiles werden im weiteren nicht betrachtet, sondern es wird nur die periodische Bewegung der Elektronen im Bereich der Grenze zum überkritischen Plasma untersucht. Diese Grenze bildet eine reflektierende Oberfläche, welche aufgrund der Dichteschwankung im Laserfeld eine oszillierende Bewegung ausführt, den oszillierenden Spiegel.

In einem ersten Schritt werden nun die Retardierungseffekte vernachlässigt und der nichtrelativistische Fall betrachtet. Der Spiegel führt eine periodische Bewegung mit der Frequenz ω_m und der Amplitude s_0 in z -Richtung aus, d.h. für die zeitabhängige Amplitude $s(t)$ gilt:

$$s(t) = s_0 \sin(\omega_m t) \quad (2.3)$$

Ein sich in der Richtung z_l ausbreitender Laserimpuls der Frequenz ω_0 kann durch folgende Formel beschrieben werden [36]:

$$\mathbf{E}(x_l, y_l, z_l, t) = \mathcal{E}(x_l, y_l) E(t) e^{i(k_o z_l - \omega_0 t)} \quad (2.4)$$

Nimmt man an, daß die räumliche Änderung des elektrischen Feldes in x_l - und y_l -Richtung vernachlässigbar ist, so gilt für das reflektierte elektrische Feld des Laserimpulses:

$$E_R \propto e^{-i\omega_0 t} e^{-i\Phi(t)} \quad (2.5)$$

2. Theoretische Modelle und Simulationsrechnungen

Wobei $\Phi(t)$ die, durch die Verschiebung des „Spiegels“ erzeugte, zeitabhängige Phasenänderung des elektrischen Feldes ist.

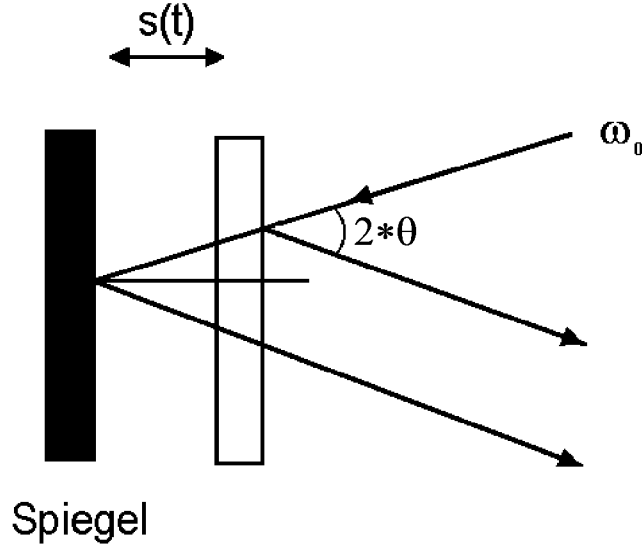


Abbildung 2.1: Reflektierter Impuls an einer sich bewegenden Spiegeloberfläche

Wie aus Abbildung 2.1 ersichtlich, ergibt sich die Phasenänderung mit dem Einfallswinkel θ aus:

$$\Phi(t) = 2k_0 s(t) \cos \theta = \frac{2\omega_0 s_0}{c} \cos \theta \sin(\omega_m t) \quad (2.6)$$

.

Damit folgt für das reflektierte, elektrische Feld:

$$E_R \propto e^{-i\omega_0 t} e^{i\chi \sin(\omega_m t)} = e^{-i\omega_0 t} \sum_{n=-\infty}^{n=\infty} J_n(\chi) e^{in\omega_m t} \quad (2.7)$$

.

Wobei:

$$\chi = \frac{2\omega_0 s_0}{c} \cos \theta \quad (2.8)$$

und $J_n(\chi)$ die Besselfunktion n-ter Ordnung ist.

In 2.7 wurde dabei von der Jacobi-Reihenentwicklung:

$$e^{i\chi \sin(\omega_m t)} = \sum_{n=-\infty}^{n=\infty} J_n(\chi) e^{in\omega_m t} \quad (2.9)$$

Gebrauch gemacht [37].

Aus Gleichung 2.7 ist ersichtlich, daß die Phasenmodulation aufgrund des oszillierenden Spiegels zur Erzeugung von Seitenbändern führt, deren Abstände von der Trägerfrequenz ω_0 ganzzahlige Vielfache der Modulationsfrequenz ω_m sind.

Nachfolgend wird gezeigt, daß die reflektierende Oberfläche eine periodische Bewegung bei der Frequenz $2\omega_0$ oder bei einer Superposition von $2\omega_0$ und ω_0 , je nach Abhängigkeit von der Polarisation oder dem Einfallswinkel, ausführt. Mit $\omega_m = \omega_0$ bzw. $\omega_m = 2\omega_0$ folgt, daß diese Art der Modulation Seitenbänder erzeugt, die gerade und ungerade Harmonische der Grundfrequenz darstellen.

Um die Bewegung der reflektierenden Oberfläche zu verstehen, betrachtet man ein freies Elektron in einer polarisierten ebenen Welle der Frequenz ω_0 . Das Elektron bewegt sich dann innerhalb einer Periode auf einer symmetrischen, der 8 ähnlichen Kurve innerhalb der Ebene, die vom Wellenvektor und dem elektrischen Feldvektor aufgepannt wird [38]. Parallel zum Wellenvektor schwingt das Elektron mit der Frequenz $2\omega_0$, senkrecht dazu in Richtung des elektrischen Feldvektors (\mathbf{E}) mit der Frequenz ω_0 . Für schwache Felder im nichtrelativistischen Fall gilt für den relativistischen Parameter a_0 :

$$a_0 = \frac{eA_0}{m_e c} \ll 1. \quad (2.10)$$

In diesem Fall überwiegt der Anteil parallel zu \mathbf{E} , wobei A_0 die Amplitude des Vektorfeldes in der Coulomb-Eichung ist und m_e die Ruhemasse des Elektrons.

Geht man davon aus, daß sich die Elektronen in der Nähe der Plasma-Vakuumschicht qualitativ genauso wie einzelne Elektronen verhalten, so ist es möglich einige Ergebnisse über die Harmonischen in Abhängigkeit des Einfallswinkels und der Polarisation zu erhalten.

a. p-polarisiertes Licht:

Bei p-polarisiertem Licht ist das elektrische Feld parallel und das magnetische Feld senkrecht zur Einfallsebene, d.h. die Bahn des Elektrons befindet sich in der Einfallsebene. Damit kann sowohl die transversale als auch die longitudinale Komponente der Elektronengeschwindigkeiten zur Bewegung der Grenzschicht beitragen. Da als Frequenzen ω_0 und auch $2\omega_0$ auftreten, können in diesem Fall gerade und ungerade Harmonische erzeugt werden.

b. s-polarisiertes Licht:

Das elektrische Feld ist in diesem Fall parallel zur Plasma-Vakuumgrenzfläche. Die Elek-

tronen bewegen sich in Folge dessen senkrecht zur Einfallsebene. In dieser Anordnung tragen also nur die longitudinalen Komponenten zur Bewegung der Oberfläche bei. Die transversale Komponente befindet sich in der Plasma-Vakuumgrenzfläche und ist daher uneffektiv. Daraus folgt, daß die Modulation nur mit der Frequenz $2\omega_0$ erfolgt und somit im reflektierten s-polarisierten Licht zunächst nur ungerade Harmonische erzeugt werden.

In Abbildung 2.2 ist die Situation für die beiden Polarisationsrichtungen der Feldvektoren dargestellt.

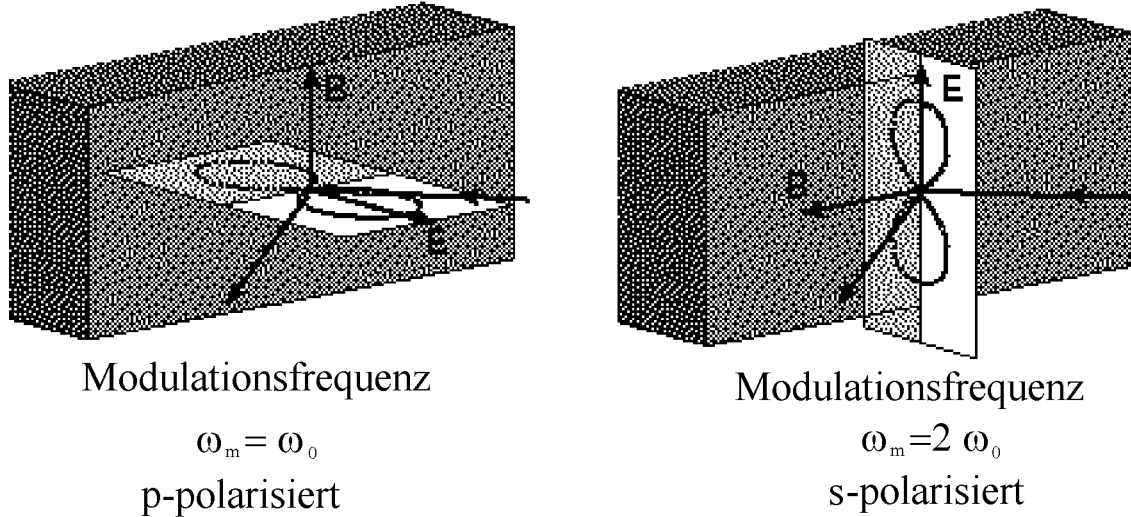


Abbildung 2.2: Bahn des Elektrons im Feld einer linear polarisierten Welle mit dem elektrischen Feldvektor \mathbf{E} und dem magnetischen Feldvektor \mathbf{B} für die beiden Polarisationsfälle

Zusätzlich zur bisher behandelten Erzeugung von Harmonischen der Grundfrequenz besteht noch eine zweite Möglichkeit zur Entstehung von höheren Harmonischen. Diese Möglichkeit geht jedoch nicht von der Phasenmodulierung des reflektierten Lichtes aus, sondern folgt einer Annahme über die Änderung der elektrischen Ladungsdichte an der Plasma-Vakuumgrenzfläche aufgrund der elektromagnetischen Felder. Die Bewegung des reflektierenden Bereiches führt zu einer Zunahme bzw. Abnahme der Elektronen im Grenzbereich. Da die Ionen in dieser Zeitskala als unbeweglich angesehen werden können, wird eine Art elektrische Dipolschicht erzeugt. Bei schrägem Einfall des Laserlichtes wird entlang der Oberfläche ein periodisch variierendes Dipolmoment erzeugt, wobei die räumliche Frequenz sich aus der Parallelkomponente des Wellenvektors ergibt und damit winkelabhängig ist. In Abbildung 2.3 ist diese Ladungsverteilung aufgetragen. Trifft s-polarisiertes Licht unter schrägem Einfall auf die Oberfläche so wird diese Dipol-

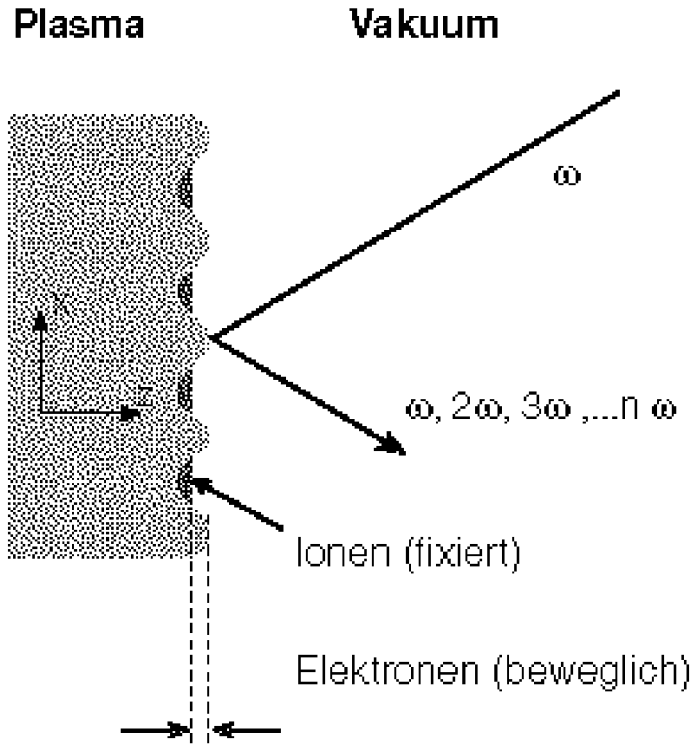


Abbildung 2.3: Ladungsverteilung an der Plasma-Vakuumgrenze

schicht mit der Frequenz $2\omega_0$ bewegt. Daraus folgt unmittelbar, daß diese Dipolschicht die p-polarisierte zweite Harmonische in Reflexionsrichtung emittiert. Wird diese Plasmavakuumgrenzschicht sehr stark bewegt, so entstehen p-polarisierte gerade und ungerade Harmonische. Zusammenfassend erhält man also folgendes Resultat:

a:

Für p-polarisiertes Licht erhält man bei schrägem Einfall p-polarisierte gerade und ungerade Harmonische.

b:

Für s-polarisiertes Licht erhält man bei senkrechtem Einfall ungerade s-polarisierte Harmonische und zusätzlich bei schrägem Einfall gerade p-polarisierte Harmonische.

Zur Berechnung des reflektierten Frequenzspektrums von monochromatischem Licht an einer sich sinusförmig bewegenden Oberfläche betrachte man eine s-polarisierte Lichtwelle, die mit dem Winkel θ in der x-z-Ebene auf die Oberfläche trifft. Der Spiegel bewege sich in z-Richtung, so daß der elektrische Feldvektor senkrecht zur x-z-Ebene ist. Das elektrische Feld kann dann wie folgt beschrieben werden:

$$E(t, x, z) = E_0 e^{-i\omega_0(t - \frac{z}{c} \sin \theta - \frac{z}{c} \cos \theta)} \quad (2.11)$$

2. Theoretische Modelle und Simulationsrechnungen

Die Bewegung der Oberfläche in z-Richtung folgt dann aus:

$$s(t, x) = s_0 \sin(\omega_m \xi) = s_0 \sin\left(\omega_m \left(t - \frac{x}{c} \sin \theta\right)\right) \quad (2.12)$$

Gleichung 2.12 berücksichtigt, daß bei schrägem Einfall die periodische Änderung der elektromagnetischen Kräfte in x-Richtung eine periodische Oberflächenverformung erzeugt. Die Periode wird durch die Oberflächenkomponente des Wellenvektors $k_x = \omega_0/c \sin \theta$ bestimmt.

Das Maximum der Oberflächenamplitude ist dadurch gegeben, daß die Geschwindigkeit der Bewegung nicht größer als die Lichtgeschwindigkeit c werden kann, d.h. $s_0 < c/\omega_m$. Für s-polarisiertes Licht gilt $\omega_m = 2\omega_0$, so daß mit Gleichung 2.8

$$\chi < \cos \theta \quad (2.13)$$

folgt. Man nimmt nun an, daß die reflektierte Welle die generelle Form einer ebenen Welle in Reflexionsrichtung hat.

$$E_R = G(u) = G\left(t - \frac{x}{c} \sin \theta + \frac{z}{c} \cos \theta\right) \quad (2.14)$$

An dieser Stelle ist der tatsächliche Wert des Reflexionskoeffizienten unwichtig. Es wird hier zunächst angenommen, daß die Oberfläche totalreflektiert. Da das elektrische Feld an der Oberfläche verschwinden muß, folgt mit $z = s(t, x)$:

$$E_R(t, x, s(t, x)) + E(t, x, s(t, x)) = 0 \quad (2.15)$$

Die beiden Ausdrücke in Gleichung 2.15 sind nur Funktionen der Variable $\xi = t - (x/c) \sin \theta$. Betrachtet man die funktionale Form von Gleichung 2.11, so folgt aufgrund der Zeitabhängigkeit der Ausdrücke in 2.15, daß das reflektierte Feld nicht monochromatisch ist. Um das Frequenzspektrum der reflektierten Welle zu erhalten, muß die Fouriertransformierte von $G(u)$ berechnet werden. Es gilt:

$$\tilde{G}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega u} G(u) du \quad (2.16)$$

mit

$$u = \xi - \frac{s_0}{c} \cos \theta \sin(\omega_m \xi) \quad (2.17)$$

aus Gleichung 2.12 und 2.14. Mit Hilfe der Variabelentransformation 2.17 kann die Fouriertransformierte einfach berechnet werden. Als Ergebnis erhält man:

$$\tilde{G}(\omega) = -2\pi E_0 \sum_{n=-\infty}^{n=\infty} \frac{1}{1 + \frac{n\omega_m}{2\omega_0}} J_n \left(\left(1 + \frac{n\omega_m}{2\omega_0}\right) \chi \right) \delta(\omega - \omega_0 - n\omega_m) \quad (2.18)$$

2. Theoretische Modelle und Simulationsrechnungen

Das Frequenzspektrum hängt also nur vom Parameter χ (siehe Gleichung 2.8) ab. Gleichung 2.18 reduziert sich für kleine Modulationsfrequenzen ($\omega_m \ll \omega_0$) auf eine zur Gleichung 2.7 äquivalente Form.

Für eine s-polarisierte Welle gilt $\omega_m = 2\omega_0$, und das reflektierte Spektrum besitzt ungerade harmonische Komponenten. Für die spektrale Intensitätsverteilung der Harmonischen ergibt sich:

$$S((2n+1)\omega_0) = (\pi E_0)^2 \left(\frac{J_n((n+1)\chi)}{n+1} - \frac{J_{n+1}(n\chi)}{n} \right)^2 \quad (2.19)$$

Die Erzeugung Harmonischer mittels einer p-polarisierten Welle kann auf die gleiche Weise behandelt werden. In diesem Fall ist das magnetische Feld senkrecht zur x-z-Ebene und das elektrische Feld in den Gleichungen muß durch das magnetische Feld ersetzt werden. In diesem Fall enthält die reflektierte Welle p-polarisierte gerade und ungerade Harmonische. Das Spektrum, welches allein durch die ω_0 Komponente erzeugt wird, berechnet sich aus:

$$S(n\omega_0) = (\pi E_0)^2 \left(\frac{J_{n-1}(\frac{1}{2}(n+1)\chi)}{\frac{1}{2}(n+1)} - \frac{J_{n+1}(\frac{1}{2}(n-1)\chi)}{\frac{1}{2}(n-1)} \right)^2 \quad (2.20)$$

In den Abbildungen 2.4 für s-polarisiertes Licht bzw. 2.5 für p-polarisiertes Licht sind die berechneten Werte der Intensitäten für verschiedene Werte des Parameters χ dargestellt. Man erkennt ein starkes Ansteigen der Intensitäten der Harmonischen für den stark relativistischen Fall $\chi = 0,98$.

Der Vergleich der beiden Abbildungen 2.4 und 2.5 zeigt einen sehr viel stärkeren Abfall für die Intensität der höheren Harmonischen im p-polarisierten Fall. Formal kann dieser Effekt dadurch erklärt werden, daß der Abfall der Intensitäten seinen Ursprung im starken Abfall der Besselfunktionen mit steigender Ordnung hat. Da die Modulationsfrequenz für s- und p-polarisiertes Licht um den Faktor 2 variiert, ist die Ordnung der Besselfunktion für eine bestimmte Frequenz für p-polarisiertes Licht ebenfalls um ungefähr einen Faktor 2 höher. Später wird gezeigt, daß höhere Werte von χ im Argument der Besselfunktion diesem Abfall bei p-polarisiertem Licht entgegenwirken.

Wie bereits oben beschrieben, folgt aus dem Modell, daß eine s-polarisierte ebene Welle s-polarisierte ungerade und p-polarisierte gerade Harmonische bei der Reflexion erzeugt. Um das Spektrum der geraden p-polarisierten Harmonischen zu erhalten, muß die Strahlung der induzierten Oberflächendipole betrachtet werden. Bei hoher Intensität und damit bei hoher Oszillationsamplitude der reflektierenden Schicht müssen Retardierungseffekte berücksichtigt werden, die dazu führen, daß die erzeugten Oberflächendipole ein Spektrum mit geraden Harmonischen hoher Ordnung abstrahlen. Die Ladungsdichte und der elektrische Strom senkrecht zur Oberfläche kann wie folgt beschrieben werden:

$$\frac{\rho(z, t)}{\rho_0} = \Theta(s_0 \sin(2\omega_0(t - \frac{x}{c} \sin\theta)) - z) - \Theta(-z) \quad (2.21)$$

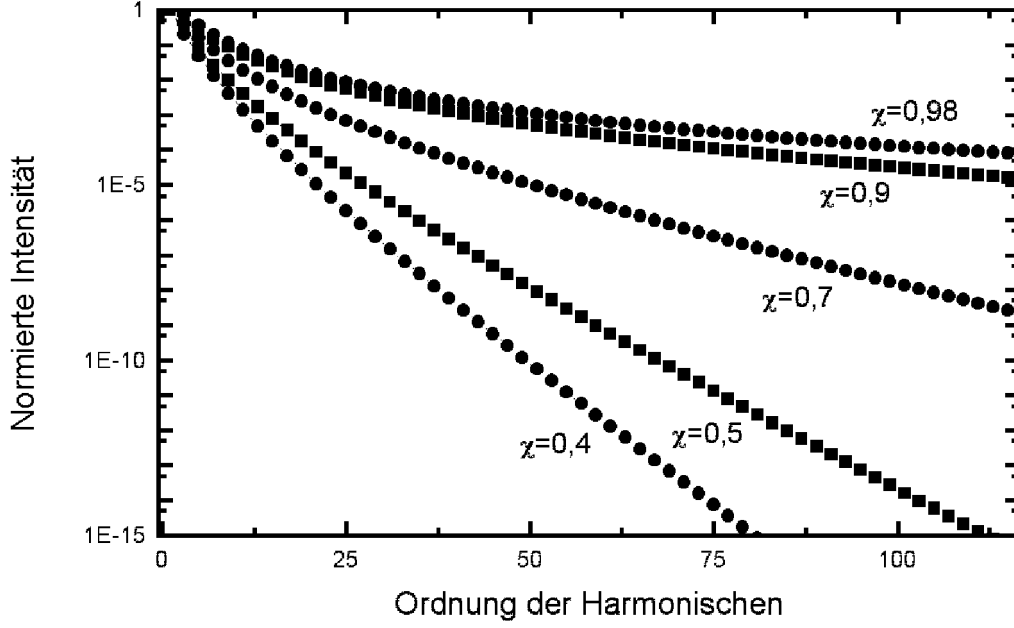


Abbildung 2.4: Intensität der Harmonischen für s-polarisiertes Licht bei verschiedenen Werten für χ

$$\frac{j_z(t, x, z)}{\rho_0} = 2\omega_0 s_0 \cos(2\omega_0(t - \frac{x}{c} \sin\theta)) \Theta(s_0 \sin(2\omega_0(t - \frac{x}{c} \sin\theta)) - z) \quad (2.22)$$

$\Theta(z)$ beschreibt hier die Heaviside-Funktion. Die Felder können daraus relativ einfach berechnet werden. Eine ausführliche Beschreibung findet sich im Anhang von [34].

Das Ergebnis zeigt, daß das p-polarisierte elektrische Feld sich aus geraden Harmonischen der Grundfrequenz zusammensetzt. Das Spektrum ergibt sich aus:

$$S(2n\omega_0) = \frac{4\pi\rho_0^2 c^2 \tan^2 \theta}{\omega_0^2 \cos^4 \theta} \left(\frac{J_n(n\chi)}{n} \right)^2 \quad (2.23)$$

Die Beispielspektren in den Abbildungen 2.4 und 2.5 zeigen, daß die Anzahl der Harmonischen, die eine bestimmte Intensitätsgrenze überschreiten, mit dem Parameter χ ansteigt. Nach Gleichung 2.8 ist χ proportional zur Oszillationsamplitude s_0 der reflektierenden Grenzfläche. Daher wird nun untersucht, wie sich die Amplitude unter verschiedenen Bedingungen verhält.

Aufgrund physikalischer Überlegung kann man davon ausgehen, daß die maximale Oberflächenauslenkung aufgrund der effektiven äußeren Kraft durch die Rückstellkraft des

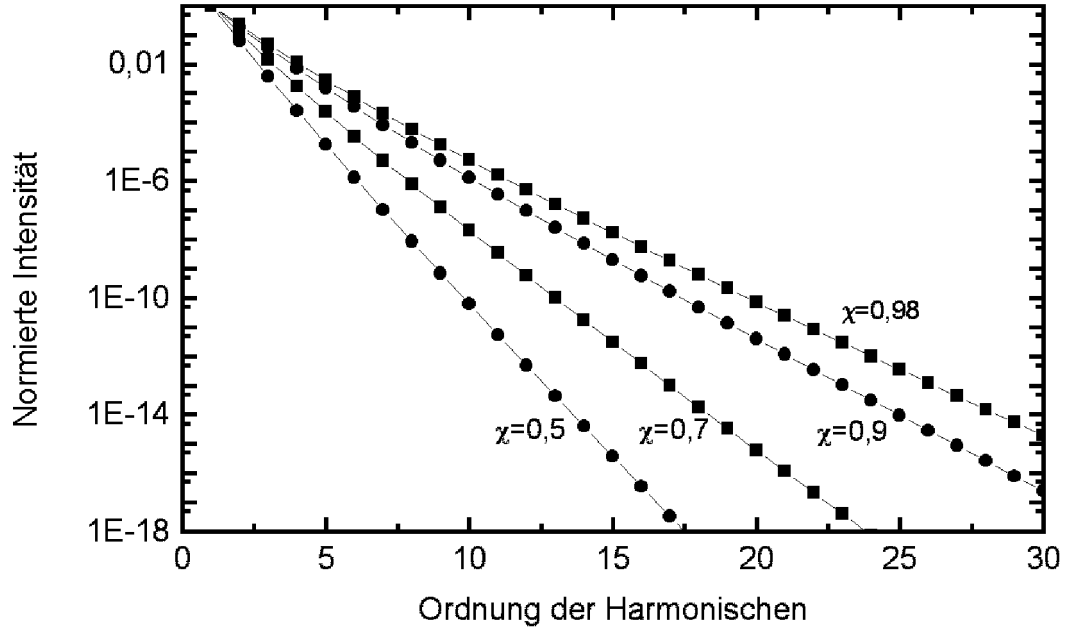


Abbildung 2.5: Intensität der Harmonischen für *p*-polarisiertes Licht bei verschiedenen Werten für χ

Plasmas begrenzt wird. Die Rückstellkraft ergibt sich aus $m_e \omega_p^2$. Für $\omega \ll \omega_p$ im nicht-relativistischen Fall ist daher der Ansatz des getriebenen harmonischen Oszillators gerechtfertigt. Es gilt:

$$\frac{d^2 s}{dt^2} + \omega_p^2 s = \frac{e}{m_e} F_{em} \quad (2.24)$$

Die Oszillationsamplitude bei der Frequenz ω ergibt sich dann mit der elektromagnetischen Kraft F_{em} aus:

$$s(\omega) = \frac{e F_{em}(\omega)}{m_e (\omega_p^2 - \omega^2)} \quad (2.25)$$

Die effektive antreibende Kraft an der Plasma-Vakuum-Grenze ist durch die Normalkomponente der elektromagnetischen Kraft bestehend aus einfallender und reflektierter Welle gegeben. Im Falle von *s*-polarisiertem Licht ist der Vektor des elektrischen Feldes parallel zur Oberfläche. Die Bewegung senkrecht zur Oberfläche wird durch das Magnet-

feld erzeugt. In der einfachsten Näherung lautet die Bewegungsgleichung also:

$$\begin{aligned}\frac{d^2 s}{dt^2} + \omega_p^2 s &= \frac{e}{m_e c} v_y B_x \\ \frac{dv_y}{dt} &= \frac{e}{m_e} E_y\end{aligned}\tag{2.26}$$

Für die Amplitude der Oberflächenbewegung der Frequenz 2ω ergibt sich dann:

$$s(2\omega) = \frac{i}{(\omega_p^2 - 4\omega^2)\omega} \frac{e^2}{2m_e^2 c} E_y(\omega) B_x(\omega)\tag{2.27}$$

$E_y(\omega)$ und $B_x(\omega)$ sind die Fourieramplituden der zeitabhängigen Felder an der Plasma-Vakuumgrenze und können über die Fresnelformeln mit Hilfe der dielektrischen Funktion des Plasmas berechnet werden.

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}\tag{2.28}$$

Im betrachteten Fall mit $\omega \ll \omega_p$ kann die Oszillationsamplitude in der Form:

$$\frac{s_0}{\lambda} = \frac{1}{2\pi} \frac{\omega^2}{\omega_p^2} a_o^2 (\cos \theta \sin \delta_s) = \frac{1}{2\pi} \frac{\omega^2}{\omega_p^2} a_o^2 F_s(\theta)\tag{2.29}$$

angegeben werden. Dabei ist λ die fundamentale Wellenlänge der einfallenden Strahlung und δ_s der Phasenwinkel des komplexen Fresnel-Koeffizienten bei Reflexion von s-polarisiertem Licht ($r_s = |r_s|e^{i\delta_s}$). $F_s(\theta)$ beschreibt die Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ , wobei darauf zu achten ist, daß auch δ_s eine Funktion des Einfallswinkels ist. Für senkrechten Einfall gilt $\sin \delta_s \approx \delta_s \approx 2\omega/\omega_p$ und Gleichung 2.29 geht über in:

$$\frac{s_0}{\lambda} = \frac{\omega^3}{\pi\omega_p^3} a_o^2\tag{2.30}$$

Zu bemerken ist, daß Gleichung 2.30 den maximalen Wert für die Oberflächenamplitude darstellt, da für s-Polarisation s_0/λ mit dem Einfallswinkel abnimmt.

Für p-Polarisation tragen sowohl die magnetischen als auch die elektrischen Kräfte zur Bewegung der Oberfläche bei. Die Amplitude der Bewegung bei der Frequenz 2ω aufgrund der magnetischen Kraft erhält man aus 2.29 durch Ersetzen von δ_s durch δ_p , wobei δ_p der Phasenwinkel des komplexen Fresnel-Koeffizienten bei Reflexion von p-polarisiertem Licht ist.

$$\frac{s_0}{\lambda} = \frac{1}{2\pi} \frac{\omega^2}{\omega_p^2} a_o^2 (\cos \theta \sin \delta_p) = \frac{1}{2\pi} \frac{\omega^2}{\omega_p^2} a_o^2 F_p(\theta)\tag{2.31}$$

Die Bewegung der Oberfläche aufgrund der Kraft des elektrischen Feldes ergibt sich

aus der Normalkomponente des elektrischen Feldes an der Plasma-Vakuumgrenze. Das Einsetzen der entsprechenden Kraft in Gleichung 2.24 ergibt folgenden Wert für s_0/λ :

$$\frac{s_0}{\lambda} = \frac{1}{2\pi} \frac{\omega^2}{\omega_p^2} a_o (2 \sin \theta \cos(\frac{\delta_p}{2})) = \frac{1}{2\pi} \frac{\omega^2}{\omega_p^2} a_o G_p(\theta) \quad (2.32)$$

Ein Vergleich der Gleichungen 2.29 und 2.31, welche die Auslenkung aufgrund des magnetischen Feldes beschreiben, und der Gleichung 2.32, die die Auslenkung durch das elektrische Feld beschreibt, zeigt, daß im nichtrelativistischen Bereich ($a_o < 1$, siehe Gleichung 2.10) die Amplitude im zweiten Fall, da proportional zu a_o , größer ist. Für magnetische Felder variiert die Amplitude mit dem Quadrat des relativistischen Parameters. Im Falle des p-polarisierten Lichtes ist es möglich, daß es zu einer konstruktiven Interferenz der einfallenden und der reflektierten Welle kommen kann. Das elektrische Feld wird dann verstärkt und kann Werte von nahezu $2E_0$ bei großen Einfallswinkeln erreichen.

Die Funktionen $F_s(\theta)$, $F_p(\theta)$ und $G_p(\theta)$ aus den Gleichungen 2.29, 2.31 und 2.31 beschreiben die Winkelabhängigkeit von s_0 . Wie man aus den Formeln für die spektrale Intensitätsverteilung entnehmen kann, wird die Winkelabhängigkeit der Erzeugung von Harmonischen durch den Parameter $\chi = 4\pi \cos \theta s_o/\lambda$ bestimmt, indem sich noch ein weiterer winkelabhängiger Faktor ($\cos \theta$) befindet. Die Winkelfunktionen sind in Abbildung 2.6 unter Berücksichtigung dieses Faktors aufgetragen.

Man erkennt, daß ein maximaler Wert von ≈ 1 für den Fall von p-polarisiertem Licht aufgrund der elektrischen Kräfte bei einem Winkel von $\theta \approx 45^\circ$ erreicht wird. Die Werte im Fall der Erzeugung durch die magnetischen Kräfte sind um ein Vielfaches kleiner und erreichen in beiden Fällen einen Maximalwert von ungefähr 0,2 bei senkrechtem Einfall.

Zusammengefaßt hängt die Amplitude der Oberflächenoszillation also von folgenden Faktoren ab:

- a. Vom relativistischen Parameter a_o .
- b. Vom Frequenzverhältnis ω/ω_p .
- c. Von der Interferenz zwischen einfallender und reflektierter Welle.

Beim letzten Punkt handelt es sich um die partielle konstruktive bzw. destruktive Interferenz der Feldkomponenten an der Grenzfläche. Aufgrund des Phasenunterschiedes zwischen reflektierter und einfallender Welle kann es zur Steigerung oder Reduzierung der elektromagnetischen Kräfte an der Grenzfläche kommen.

Anhand der Gleichungen 2.29, 2.31 und 2.32 für den Quotienten s_0/λ erkennt man, daß die Effektivität der Erzeugung von höheren Harmonischen im hoch relativistischen Fall für $a_o \gg 1$ maximal wird.

Der Frequenzfaktor ω/ω_p beschreibt den Widerstand des Mediums gegen eine Verschiebung der Ladungsdichte. Daraus folgt, daß Plasmen mit Festkörperdichte nicht die optimale Wahl zur Erzeugung von höheren Harmonischen sind. Für typische Festkörper und

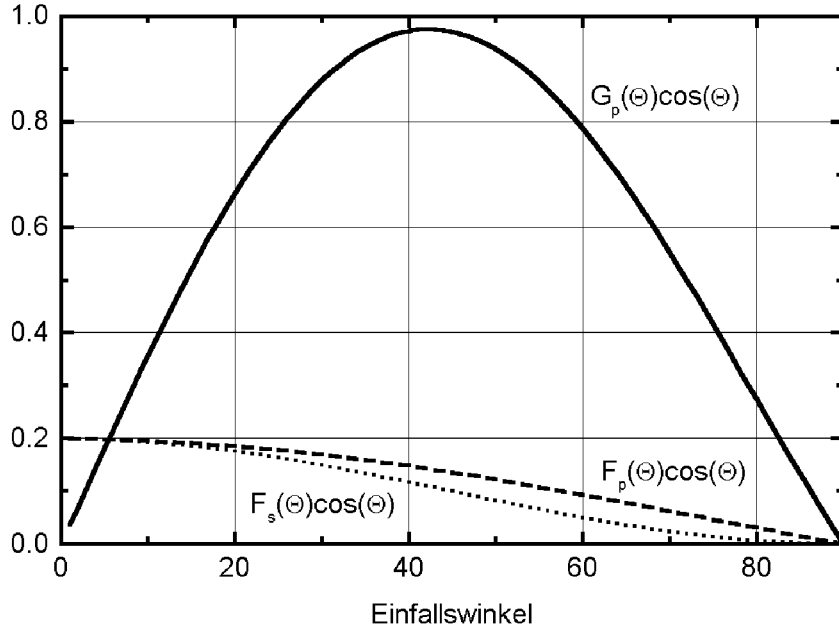


Abbildung 2.6: Winkelabhängigkeit von χ für p-polarisiertes Licht bei elektrischer Anregung (durchgezogene Linie) und magnetischer Anregung (gestrichelte Linie). Die gepunktete Linie gibt die Winkelabhängigkeit für s-polarisiertes Licht wieder.

Laserwellenlängen von ca. $1\ \mu\text{m}$ ist $\omega/\omega_p \approx 0,1$. Rechnungen von Lichters et al. [19] zeigen ein Maximum in der Amplitude bei magnetischer Anregung für $\omega/\omega_p = 0,5$. Allerdings wird zur Berechnung ein stufenförmiges Dichteprofil während der Wechselwirkung mit dem Laser vorausgesetzt. In der Praxis wird man aber eher eine verbreiterte Dichtestufe aufgrund der Expansion während der Wechselwirkung haben.

2.2 Das Dichtestufenmodell

Ein weiteres Modell, welches die Grundlage der in Abschnitt 2.3 beschriebenen PIC-Simulation bildet, ist das sogenannte Dichtestufenmodell [39], wobei näherungsweise von der Oszillation einer Dichtestufe an der Oberfläche des Festkörpers ausgegangen wird. Es sind dann zwei Betrachtungsweisen möglich. Die erste Möglichkeit behandelt das Plasma als kalte Flüssigkeit (siehe Abschnitt 2.2.1), in der zweiten wird die Bewegung eines einzelnen Elektrons an der Oberfläche beschrieben (Abschnitt 2.2.2).

Trifft ein hochenergetischer Laserimpuls auf eine Festkörperoberfläche, so kann man davon ausgehen, daß bereits die Anstiegsflanke des Laserimpulses das Material größtenteils ionisiert. Aufgrund dessen wird vorausgesetzt, daß der Hauptteil des Laserimpulses mit einem überdichten Plasma wechselwirkt. Die Ionen können aufgrund ihrer großen Masse und der kurzen Wechselwirkungsdauer als unbeweglich angesehen werden. Nun wird angenommen, daß die Elektronendichte von dem einfallenden Laserfeld wie durch einen Stempel unter Beibehaltung des stufenförmigen Profils zur Oszillation angetrieben wird [40]. Eine einlaufende Welle wird dann an der Dichtestufe mit einem Phasensprung reflektiert. Im Plasma selber ist bei Überschreitung der kritischen Dichte keine Ausbreitung der Welle möglich und das Feld der Welle wird exponentiell gedämpft. Als ein Maß für die Steilheit der Dichtestufe kann die Debye-Länge des Plasmas verwendet werden [41]. Es gilt:

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k T}{2 n_e e^2}} \quad (2.33)$$

Bei den verwendeten Laserintensitäten von $\approx 10^{17} \text{ W/cm}^2$ gilt $\lambda_D < Z$ mit der Oszillationsamplitude Z , so daß die Näherung einer Stufe gerechtfertigt ist. Für die Gleichung der Bewegung an der Dichtestufe läßt sich nun folgender Ansatz machen:

$$\frac{d\mathbf{p}}{dt} = \mathbf{F}_R + \mathbf{F}_L + \mathbf{F}_D \quad (2.34)$$

Darin ist \mathbf{F}_R die Rückstellkraft, \mathbf{F}_L die antreibende Kraft (Laser) und \mathbf{F}_D eine Dämpfung. $d\mathbf{p}/dt$ stellt die Impulsänderung eines Flüssigkeitselements (siehe Abschnitt 2.2.1) bzw. eines einzelnen Elektrons (Abschnitt 2.2.2) an der Dichtestufe dar. Durch die Bewegung der Elektronen wird eine Ladungstrennung an der Dichtestufe erzeugt, die eine Rückstellkraft zur Folge hat, welche proportional zur Auslenkung (z) ist. Es gilt:

$$\mathbf{F}_R = -m\omega_p^2 z \mathbf{e}_z \quad (2.35)$$

Dieser Ausdruck kann benutzt werden solange die Eindringtiefe größer als die Oszillationsamplitude ist [42]. Die treibende Kraft \mathbf{F}_L des Lasers wird durch die Lorentzkraft berücksichtigt, d.h.:

$$\mathbf{F}_L = q(\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}). \quad (2.36)$$

Der Dämpfungsterm \mathbf{F}_D in der Bewegungsgleichung 2.34 kann durch Stöße von Elektronen und Ionen im Plasma verursacht werden. Setzt man eine kollektive Bewegung der Elektronen voraus, so müssen nur die Elektronen-Ionen Stöße gegebenenfalls mit einbezogen werden. Eine Abschätzung der Stoßfrequenz ergibt $f_{Ie} \ll (n/n_c)\omega \approx 10^{16} - 10^{17}$ Hz für ein 10 – 100-fach überkritisches Plasma, d.h. das Plasma ist quasi stoßfrei und man kann die Dämpfung im Vergleich zur rücktreibenden Kraft vernachlässigen. Für die Bewegungsgleichung der Dichtestufe erhält man also die Gleichung für den getriebenen harmonischen Oszillator mit:

$$\frac{d\mathbf{p}}{dt} + m\omega_p^2 z \mathbf{e}_z = q(\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}) \quad (2.37)$$

Bei hoher Laserintensität treten hohe Geschwindigkeiten der Elektronen auf, so daß in Gleichung 2.37 der Impuls durch den relativistischen Impuls $\mathbf{p} = m\gamma\mathbf{v}$ ersetzt werden muß. Durch den relativistischen γ -Faktor entsteht eine zusätzliche Nichtlinearität, wodurch die Bewegung für hohe Intensitäten zunehmend anharmonischer wird.

2.2.1 Beschreibung als kalte Plasmaflüssigkeit

In dieser Näherung beschreibt man das Plasma als sogenanntes kaltes Plasma, d.h. die Temperaturabhängigkeit wird vernachlässigt und es wird nur eine feste Geschwindigkeit anstatt einer Geschwindigkeitsverteilung angenommen. Die einfallende Laserwelle wird als linear polarisierte ebene Welle charakterisiert. Die elektrischen und magnetischen Felder werden über das Vektorpotential \mathbf{A} und über das skalare Potential Φ definiert [43].

$$\mathbf{E} = -\nabla\Phi - \frac{\partial}{\partial t}\mathbf{A} \quad (2.38)$$

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A} \quad (2.39)$$

Bekanntlich ergibt sich dann mit der Coulomb-Eichung ($\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$) und den Maxwell-Relationen die Wellengleichung und die Poissongleichung.

$$\nabla^2 \Phi = -\frac{1}{\epsilon_0} \rho \quad (2.40)$$

$$\nabla - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{A} = -\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \mathbf{j}_t \quad (2.41)$$

Darin beschreibt ρ die Ladungsdichte und \mathbf{j}_t die Stromdichte in transversaler Richtung. Das Vektorpotential \mathbf{A} und das skalare Potential Φ sind zeit- und ortsabhängig.

Die relativistische Bewegung der Elektronen wird nun durch folgende Gleichung beschrieben:

$$m_e D_t(\gamma\mathbf{v}) = q(\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}) \quad (2.42)$$

$D_t = \partial/\partial t + \mathbf{v}\nabla$ ist ein Differentialoperator, der an dieser Stelle verdeutlichen soll, daß in dieser Bewegungsgleichung für ein Flüssigkeitselement die totale Zeitableitung unter Einbeziehung des konvektiven Terms auftritt.

Nun betrachtet man eine eindimensionale Dichtestufe bei senkrechtem Einfall. Die einfallende Welle breitet sich entlang der z-Achse aus und die Ionen füllen den Halbraum $z \geq 0$. Aufgrund der Symmetrie in x- und y-Richtung ist der generalisierte Transversalimpuls eine Erhaltungsgröße [44]. Aus diesem Grund läßt sich die nichtlineare Wellengleichung für das normierte Vektorpotential \mathbf{a} , die Possiongleichung und die longitudinale Bewegung in folgender Form schreiben [19, 45, 46]:

$$\nabla - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} a_{x,y} = \left(\frac{\omega_p}{c} \right)^2 \tilde{n}_e(z) \sqrt{1 - \beta_z^2} \frac{a_{x,y}}{\sqrt{1 + a_x^2 + a_y^2}} \quad (2.43)$$

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} \varphi = \left(\frac{\omega_p}{c} \right)^2 (\tilde{n}_e(z) - \Theta(z)) \quad (2.44)$$

$$\frac{d}{dt} \beta_z = \frac{c}{\gamma} (1 - \beta_z^2) \frac{\partial}{\partial z} \varphi - \frac{1}{\gamma^2} \left(c \frac{\partial}{\partial z} + \beta_z \frac{\partial}{\partial t} \right) \frac{a^2}{2} \quad (2.45)$$

Hierbei sind:

$$a = \frac{eA}{m_e c} \quad (2.46)$$

$$\varphi = \frac{e\Phi}{m_e c^2} \quad (2.47)$$

die dimensionslosen Potentiale, $\tilde{n}_e(z) = n_e/n_0$ die auf den Maximalwert n_0 normierte Elektronendichte, $\Theta(z) = n_i/n_0$ das Stufenprofil der Ionendichte und $\beta_z = v_z/c$ die Geschwindigkeit in z-Richtung.

Die Bewegung der Elektronen erzeugt sich räumlich und zeitlich ändernde Strom- und Ladungsdichten, die Quellen für die Felder bilden, in denen sich die Elektronen bewegen. Mit Hilfe von PIC-Codes (siehe 2.3) werden diese Gleichungen selbstkonsistent gelöst. Ein schräger Einfall der Laserwelle kann durch eine Lorentz-Transformation in ein Bezugssystem behandelt werden, welches sich parallel zur Oberfläche bewegt.

2.2.2 Einzelelektronennäherung

Alternativ zur Beschreibung als Plasmaflüssigkeit über die Elektronendichte kann man die Bewegungsgleichung für ein einzelnes Elektron betrachten. Für dieses einzelne Elektron wird die Bewegungsgleichung mit einer linearen Rückstellkraft aufgestellt. Damit ist es möglich, die Bahnkurve und damit die Abstrahlung der einzelnen beschleunigten Ladung zu berechnen. Durch die Verwendung der linearen Rückstellkraft nach Gleichung 2.37 wird das skalare Potential Φ nicht mehr benötigt, und die Felder in der Lorentzkraft beinhalten nur die Anteile der Laserwelle. Da sich das betrachtete Teilchen an der Oberfläche der Dichtestufe befindet, wird in der Bewegungsgleichung die Überlagerung

von einlaufender (_e) und reflektierter (_r) Welle berücksichtigt. Die Bewegungsgleichung lautet damit:

$$\frac{d\mathbf{p}}{dt} + m\omega_p^2 z \mathbf{e}_z = q((\mathbf{E}_e + \mathbf{E}_r) + \mathbf{v} \times (\mathbf{B}_e + \mathbf{B}_r)) \quad (2.48)$$

Die übrigen Elektronen und Ionen werden in dieser Gleichung durch die Plasmarückstellkraft berücksichtigt und gehen in den Ansatz für die Felder ein, da im Plasma eine Abschirmung des elektrischen Feldes mit exponentiellem Abfall angenommen wird. Die Bewegungsgleichung ist dreidimensional und bei Verwendung von $\mathbf{p} = m\gamma\mathbf{v}$ voll relativistisch. Über einen Ansatz für die Vektorpotentiale von einlaufender, reflektierter und transmittierter Welle lassen sich die Felder bestimmen. Eine ausführliche Beschreibung findet sich in [39]. Die erzeugten Bewegungsgleichungen beschreiben die Oszillation eines Elektrons, die periodisch aber aufgrund des relativistischen Faktors für große Laserintensitäten zunehmend anharmonisch ist. Die Lösung der Bewegungsgleichungen wird dann numerisch ermittelt. Aus den sich ergebenden Elektronenbahnen errechnen sich die abgestrahlten Spektren. In den berechneten Spektren existiert weder ein Plateau noch existiert eine maximale Ordnung, ab der die Erzeugung der Harmonischen abbricht. Bei einer Steigerung der Laserintensität nimmt die Anzahl und die Intensität der Harmonischen zu. Die Abnahme der Intensität der höheren Harmonischen fällt für Intensitäten im relativistischen Bereich für eine s-polarisierte eingestrahlte Laserwelle geringer aus als für eine p-polarisierte (siehe auch Abschnitt 2.1). Die Intensität der Harmonischen nimmt für p-polarisiertes Licht für kleine Einfallswinkel zu und fällt für große Einfallswinkel stark ab. Bei s-polarisiertem Licht erhält man für den senkrechten Einfall ein Maximum, allerdings keine geraden Harmonischen. Stärkere Emission von Harmonischen läßt sich feststellen, wenn die Plasmadichte Resonanzen mit $\omega_p = N\omega$ durchläuft. Besonders stark ist dieser Effekt für $N = 2$. Im allgemeinen nimmt die Emission der Harmonischen mit steigendem Verhältnis ω_p/ω ab, da die Rückstellkräfte größer werden und so eine größere Amplitude verhindern.

2.3 PIC-Simulation

Zur detaillierten numerischen Simulation der relativistischen Laser-Plasma-Wechselwirkung im Bezug auf die Erzeugung hoher Harmonischer an Festkörperoberflächen werden sogenannte Particle-In-Cell (PIC) Codes verwendet [33, 35, 47]. Für diese Rechnungen fasst man mehrere Partikel (hier Elektronen) zu einem Makropartikel in einer Zelle zusammen und geht davon aus, daß sich diese Partikel im wesentlichen wie das Makropartikel verhalten. Die Bewegung dieser Makropartikel wird pro Zeitabschnitt mit Hilfe der relativistischen Bewegungsgleichung berechnet. Diese Bewegung der Elektronen induziert zeitlich und örtlich variierende Strom- und Ladungsdichten, die wiederum Quellen für Felder darstellen, in denen sich die Elektronen bewegen. Diese Ladungs- und Stromdichten werden mit Hilfe der Poisson- und der Wellengleichung numerisch gelöst. Damit ist man in der Lage, die aktuellen Felder für die Bewegungsgleichung des nächsten Zeitabschnitts zu berechnen. Genaue Berechnungen benötigen eine hohe Zahl von Zellen und möglichst kleine Zeitabschnitte, deren Größe allerdings von der Rechenzeit bzw. der Geschwindigkeit der verwendeten Rechner abhängt [19, 33]. An dieser Stelle sollen nun die Ergebnisse der Simulationsrechnungen vorgestellt werden.

a.

Erreicht die Intensität des Laserimpulses den relativistischen Bereich von $I > 10^{18} \text{ W/cm}^2$, so steigt die Intensität der erzeugten Harmonischen stark an [19, 33, 48].

b.

Die Intensitäten der Harmonischen steigen für niedrigere Plasmadichten an und erreichen ein Maximum für $\omega_p = 2\omega$, wenn der oszillierende Anteil der pondermotorischen Kraft mit der Plasmafrequenz in Resonanz ist [19].

c.

Für s-polarisiertes Licht fällt das Signal monoton mit steigendem Einfallswinkel [19].

d.

Für p-polarisiertes Licht existiert ein förderlicher Winkel aufgrund der gegenläufigen Änderung der pondermotorischen Kraft und der Normalkomponente des elektrischen Feldes.

e.

Die Emission von Harmonischen ist für s-polarisierten Einfall erheblich geringer als für p-polarisierten Einfall [19, 33].

f.

S-polarisiert einfallendes Licht erzeugt s-polarisierte ungerade Harmonische und p-polarisierte gerade Harmonische [19].

g.

P-polarisiert einfallendes Licht erzeugt p-polarisierte gerade und ungerade Harmonische, aber keine s-polarisierte Harmonische [19].

h.

Zirkular-polarisiertes Licht erzeugt keine Harmonische [19].

3. Die verwendeten Laseranlagen

Wenn man Experimente mit ultrakurzen Laserimpulsen durchführt, muß man vor allem bei sehr hohen Intensitäten genau über bestimmte Eigenschaften der Laserimpulse informiert sein. Bei Intensitäten von bis zu 10^{18} W/cm^2 ist es zum Beispiel erforderlich, Impulse mit einem möglichst hohen Impulscontrast zu benutzen. Bei einem Abfall der Impulsintensität von 4 Größenordnungen innerhalb einer Pikosekunde liegt immer noch eine Intensität von 10^{14} W/cm^2 vor, die damit über der Ablationsschwelle der Proben liegt [49]. In diesem Fall kann dann nicht mehr von einem reinen Femtosekundenexperiment gesprochen werden. Wie sich im folgenden zeigen wird, ist gerade der Impulscontrast von großer Bedeutung, wenn es um die effektive Erzeugung von höheren Harmonischen an Festkörperoberflächen geht. Von daher werden in diesem Kapitel nach der Vorstellung der allgemeinen Funktionsweise der verwendeten Ti:Saphir-Anlagen und der Meßmethoden zur Bestimmung der Impulseigenschaften die Parameter der verwendeten Laserimpulse aufgezeigt.

3.1 Aufbau der Ti:Saphir-Laseranlagen

In der Ultrakurzzeitphysik werden seit einigen Jahren sogenannte T^3 -Laseranlagen (Terawatt-Table-Top) standardmäßig eingesetzt [50]. Bei Wiederholraten von einigen kHz bis einige Hz liegen die Impulsdauern im Bereich von 10 fs bis 100 fs. Dabei werden Energien von mehreren mJ bis zu einigen J erreicht. Am häufigsten verwendet wird der Ti:Saphir Kristall bei der Erzeugung ultrakurzer Laserimpulse, da er u.a. eine Verstärkungsbandbreite von $FWHM = 230 \text{ nm}$ ($FWHM$ für Full Width Half Maximum) besitzt. Damit ist es möglich Laserimpulse mit einer Impulsdauer von $< 10 \text{ fs}$ zu erzeugen. Typischerweise werden die Impulse mit einem modengekoppelten Oszillator, welcher mit einem CW-Argon-Ionen-Laser gepumpt wird, erzeugt. Eine direkte Verstärkung dieser ultrakurzen Impulse ist nicht möglich, da die entstehenden Spitzenintensitäten Schäden an den optischen Komponenten des Systems erzeugen würden und sich die Impulseigenschaften durch das Einsetzen von nichtlinearen Effekten verschlechtern würden. Durch die Verwendung des CPA-Prinzips (Chirped Pulse Amplification) wurde die Möglichkeit geschaffen, diese Probleme zu umgehen. Dazu wird der Laserimpuls zunächst durch eine dispersive Verzögerungsanordnung zeitlich gedehnt. Die verwendeten Dehnungsfaktoren liegen in den Größenordnungen von 10^3 bis 10^5 , so daß die Intensität des Laserimpulses um das gleiche Maß gesenkt wird. Nach der Verstärkung in einer oder mehreren Verstärkerstufen wird der Impuls unter Verwendung einer dispersiv konjugierten Verzögerungsstrecke, dem Kompressor, zeitlich wieder gestaucht.

3.2 Verfahren zur Bestimmung der Impulseigenschaften

Bei vielen Messungen hängt der Verlauf des Experimentes entscheidend von der Eigenschaft der Laserimpulse ab. Neben der Amplitude ist vor allem zur Optimierung der Impulsdauer die Kenntnis der Phasenbeziehung der einzelnen Spektralkomponenten des Impulses wichtig. Das Messen von Lichtimpulsen im Subpikosekundenbereich mit elektrooptischen und elektronischen Mitteln ist relativ schwierig [51]. Da die verwendeten Laserimpulse eine vergleichsweise hohe Intensität aufweisen, ist es möglich durch die Verwendung nichtlinearer Effekte extrem kurze Lichtimpulse zu messen [52–55].

3.2.1 Autokorrelationsverfahren

Die im Moment am häufigsten verwendete Methode zur Bestimmung der Impulsdauer ist die sukzessive Messung von Autokorrelationsfunktionen höherer Ordnung. Dazu wird der Laserimpuls aufgespalten und ein Signal erzeugt, das proportional zum Überlapp der beiden gegeneinander zeitverzögerten Teilimpulse ist. Das Signal wird in den meisten Fällen durch die Verwendung eines nichtlinearen Effektes erzeugt. Die Impulsdauer kann dann aufgrund des Faltungssignals unter Annahme einer bestimmten Impulsform abgeschätzt werden [56]. Bei den hier vorgestellten Messungen war neben der Impulsdauer vor allem auch der Impulskontrast von großem Interesse. Die Tatsache, daß der Impulskontrast über mehrere Größenordnungen bekannt sein soll, stellt dementsprechend hohe Anforderung an die Detektion des erzeugten nichtlinearen Signals. Der gemessene Impulskontrast gibt dann relativ gut die Steilheit der Laserimpulsflanken wieder. Ein Nachteil dieses Verfahrens ist die Tatsache, daß zur Erzeugung der Faltungsfunktion meistens mehrere Laserimpulse notwendig sind, so daß man nur eine gemittelte Information über die Laserimpulse erhält.

3.2.2 Frog-Verfahren

Verfahren, welche die exakte Bestimmung von Amplitude und Phase eines Laserimpulses ermöglichen, sind die sogenannten FROG-Verfahren (Frequency Resolved Optical Gating) [57]. Bei diesen Verfahren wird mit Hilfe eines iterativen Algorithmus aus zweidimensionalen Funktionen der zeitliche Impulsverlauf sowie die Phase des Laserimpulses berechnet. Bei den zwei-dimensionalen Funktionen handelt es sich entweder um eine Zeitkorrelation des Impulses bei verschiedenen Wellenlängen oder des Spektrums bei verschiedenen Zeitverschiebungen. Der Vorteil des Verfahrens liegt neben der vollständigen Information von Amplitude und Phase auch darin, daß die Aufnahme der zweidimensionalen Funktion mit einer CCD-Kamera als „Online“-Monitor zur Überwachung der Impulsqualität dienen kann. Größere Schwankungen im Impulsverlauf können somit sofort erkannt werden.

3.3 Eigenschaften der Laserimpulse in Palaiseau

Der erste Teil der im Rahmen dieser Arbeit diskutierten Experimente, wurde am ENSTA, Laboratoire d'Optique Appliquée in Palaiseau durchgeführt. Abbildung 3.1 zeigt die Autokorrelationsfunktion 3. Ordnung der Ti:Saphir-Anlage. Der Kontrast erreichte einen Wert von 10^{-6} in 1 ps. Gemessen wurde mit einer Energie von 50 mJ bei einer Impulsdauer von ca. 35 fs. Bei einer Fokussierung auf einen Radius von $10\text{ }\mu\text{m}$ wird damit eine Intensität von $> 10^{18}\text{ W/cm}^2$ erreicht. Diese Intensitäten ermöglichen Versuche, die in einem Bereich liegen, in dem relativistische Effekte bei der Bewegung der Festkörperelektronen nicht mehr zu vernachlässigen sind.

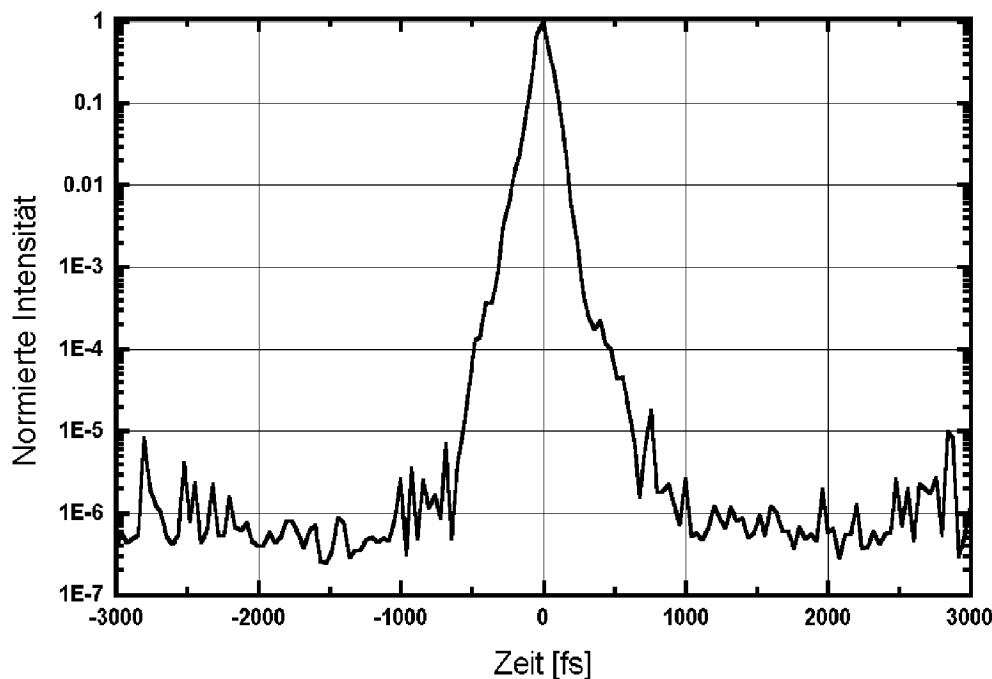


Abbildung 3.1: Autokorrelationsfunktion 3. Ordnung des Ti:Saph Lasers in Palaiseau

3.4 Eigenschaften der Laserimpulse an der Universität Essen

An der Universität GH Essen wurde mit Erfolg eine Ti:Saphir-Laseranlage aufgebaut. Daher bestand die Möglichkeit weitere Experimente mit höheren Harmonischen durchzuführen. Die Laserimpulse des Oszillators werden nach der zeitlichen Dehnung mit Hilfe von zwei Verstärkerstufen verstärkt. Dazu wird jeweils ein weiterer Ti:Saphir Kristall mit einem frequenzverdoppelten Nd:YAG-Laser gepumpt. Die erste Verstärkung erfolgt durch eine 8-Wege-Verstärkung. In dieser Vorverstärkerstufe ist die Verstärkung relativ hoch (10^6), d.h. die Impulse werden in den Bereich von einigen mJ verstärkt. Die

3. Die verwendeten Laseranlagen

zweite Verstärkerstufe, die auch aus einer Multipass-Anordnung besteht, dient dann als Leistungsverstärker. An der Anlage in Essen wurde zum Zeitpunkt der Messungen eine Anordnung mit nur zwei Durchgängen durch den Verstärkerkristall gewählt. Aufgrund der Kristallgröße konnte der Strahldurchmesser des Laserimpulses nicht erhöht werden, was die Maximalenergie zunächst auf ca. 70 mJ beschränkt hat. Eine höhere Energie hätte zu einer zu hohen Energiedichte geführt, welche eine Zerstörung der Umlenkspiegel zur Folge gehabt hätte. In Essen konnte daher zu diesem Zeitpunkt auf Laserimpulse mit folgenden Eigenschaften zugegriffen werden:

Energie: bis 70 mJ

Impulsdauer: 120 fs

Kontrast: 10^4 in 1 ps

Wiederholrate: 10 Hz

Damit ist es möglich, Versuche mit Intensitäten bis zu einigen 10^{17} W/cm² durchzuführen. In Abbildung 3.2 ist die Autokorrelationsfunktion 2. Ordnung der Ti:Saphir-Anlage in Essen dargestellt.

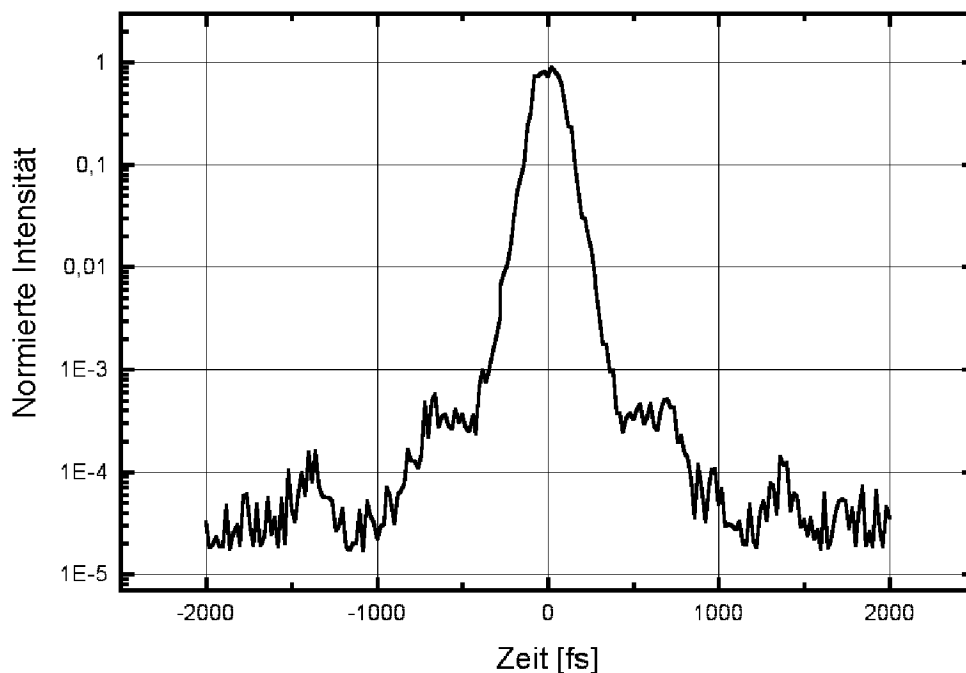


Abbildung 3.2: Autokorrelationsfunktion 2. Ordnung der Essener Ti:Saphir-Anlage

Aufgrund der eingangs gemachten Bemerkung sei darauf hingewiesen, daß nicht die Beschränkung in der maximalen Energie, sondern der erreichte Impulskontrast die Messungen mit höherer Intensität beeinträchtigt. Aus diesem Grund wurden die in Essen

3. Die verwendeten Laseranlagen

durchgeführten Messungen bei einer Energie von maximal 20 mJ aufgenommen. Nachdem der Laser thermisch stabilisiert wurde, konnte jedoch eine hohe Reproduzierbarkeit der Impulse und damit der Meßergebnisse erreicht werden, die es erlaubte, weitergehende Experimente durchzuführen.

4. Die durchgeführten Experimente

In diesem Kapitel werden die durchgeführten Experimente sowie der Versuchsaufbau mit den verwendeten Meßgeräten beschrieben. Damit sollten folgende Fragestellungen untersucht werden:

- a. Existiert eine obere Grenze in der Ordnung bei der Erzeugung von Harmonischen mit fs-Laserimpulsen? D.h. gibt es einen „cut-off“ oder verschwindet dieser bei der Benutzung relativistischer Intensitäten, wie theoretisch vorhergesagt?
- b. Sind die erzeugten höheren Harmonischen räumlich kohärent?
- c. Wie groß ist die erreichte Konversion von der Fundamentalen in die jeweilige Ordnung der Harmonischen?
- d. PIC Simulationen ergeben, daß es eine förderliche Plasmadichte gibt, bei der die Intensität der Harmonischen ansteigt. Kann man also durch Einführen eines Vorimpulses die Effektivität steigern?

Im folgenden wird zunächst der Versuchsaufbau und die Justage des konstruierten Spektrometers beschrieben. Danach werden die Ergebnisse der Messungen aus Palaiseau sowie aus Essen für den langwelligen und kurzwelligen Wellenlängenbereich vorgestellt und diskutiert. Dabei wurde in allen Fällen ein p-polarisierter Laserimpuls verwendet, da sich in früheren Experimenten gezeigt hat, daß mit s-polarisierten Impulsen das Signal der Harmonischen deutlich schwächer war [14]. Abschnitt 4.4 beschäftigt sich mit der Frage zur Kohärenz der Harmonischen. Dazu wurde in Frankreich neben der Messung in Reflexion auch ein einfaches Experiment mit einem Transmissionstarget durchgeführt. Die zunächst relativ einfache Messung in Reflexion konnte in Essen mit größerem Aufwand verbessert werden.

Mit den erhaltenen Resultaten läßt sich dann mit Hilfe einer Kalibrierungsmessung unter Verwendung einer Hohlkathodenlampe die Konversionseffizienz berechnen (siehe Abschnitt 4.5).

Abschnitt 4.6 behandelt schließlich die Effektivität der Harmonischenemission in Abhängigkeit von der Skalenlänge des Plasmas, welche durch die Einführung eines Vorimpulses gezielt verändert werden konnte.

Der abschließende Abschnitt 4.7 zeigt die Unterschiede auf, die bei der Verwendung von verschiedenen Targetmaterialien entstehen.

4.1 Der Versuchsaufbau

Der zu detektierende Teil der Harmonischenemission befindet sich im Bereich des sogenannten Vakuum-UV. Daher ist es zwingend erforderlich, die Versuche im Vakuum durchzuführen. Dies bedeutet, daß sich nicht nur das Target aufgrund der Laserfokussierung, sondern auch das komplette Spektrometer im Vakuum befinden müssen. Da Teile der Messungen in Palaiseau stattfanden, wurde durch die Konstruktion eines modular aufgebauten Spektrometers die Möglichkeit geschaffen, sowohl für die Vakuumkammer an der Universität Essen als auch für die Kammer in Frankreich auf einen justagefähigen Aufbau zurückgreifen zu können.

4.1.1 Das verwendete Spektrometer

Zur Wellenlängendispersion der entstehenden Strahlung wurde ein sogenanntes „Flatfield-Gitter“ der Firma Jobin Yvon benutzt. Dabei handelt es sich um ein Toroidgitter, welches so korrigiert wurde, daß sich das ergebene Spektrum nicht auf dem sogenannten „Rowlandkreis“, sondern in einem ebenen Bildfeld dem „Flatfield“ befindet. Das Gitter liefert eine Punkt zu Punkt Abbildung des Spektrums in einem Bereich von 10 – 110 nm auf einer Länge von 4 cm. Abbildung 4.1 zeigt die Dispersion des Gitters in Abhängigkeit von der Wellenlänge.

Die Dispersion ändert sich demzufolge von 22,67 Å/mm bei 10 nm bis 27 Å/mm bei 110 nm. Der Einfallswinkel auf das Gitter beträgt 70,565° und muß so genau wie möglich eingehalten werden, um eine möglichst hohe Abbildungsgenauigkeit zu erzielen. Daher wurde es notwendig eine Möglichkeit zu schaffen, den Targetpunkt mit einer Genauigkeit von mindestens 100 µm zu justieren. Das Gitter wurde auf einem Goniometer in Verbindung mit einem Drehtisch befestigt. Der Aufbau des Spektrometers ist in Abbildung 4.2 wiedergegeben. Am Eingang des Spektrometers ist unter Verwendung von Paßstiften eine Nadel zur Fixierung des Targetpunktes angebracht, die sich seitlich und in der Höhe verstellen läßt.

Zur Justage des Spektrometers wurde zusätzlich die Montage eines Pinholes an der Position der Nadelspitze ermöglicht. Mit Hilfe eines auf das Pinhole aufgebrachten Gitters läßt sich nun die Justierung an der Abbildung der nullten Ordnung überprüfen. Dies ist bei diesem speziellen Gitter möglich, da die nullte Ordnung in unmittelbarer Nähe der 10 nm Abbildung liegt und so die Abbildungsebene übereinstimmt. Die direkte Einstellung des Gitters während der eigentlichen Messung eines Spektrums ist nicht möglich, da eine Verstellmöglichkeit im Vakuum nur mit Motoren, verbunden mit einem hohen Kostenaufwand, zu realisieren gewesen wäre. Das Spektrum wird zunächst auf einen Phosphorschirm abgebildet. Dabei handelt es sich um eine Glasscheibe, auf deren Innenseite ein phosphoreszierendes Pulver sedimentiert wurde. Verwendet wurde zum einen ein bei der Firma Proxitronik käuflich erworbener Phosphorschirm und zum anderen ein selbsthergestellter Schirm. Als phosphoreszierendes Pulver wurde in beiden Fällen Gadolinium Oxysulfid:Terbium ($Gd_2O_3S : Tb$) Typ P43 von der Firma Sylvania benutzt. Dieser Phosphor bietet eine gute Konversion im Bereich des zu messenden Spektrums.

4. Die durchgeführten Experimente

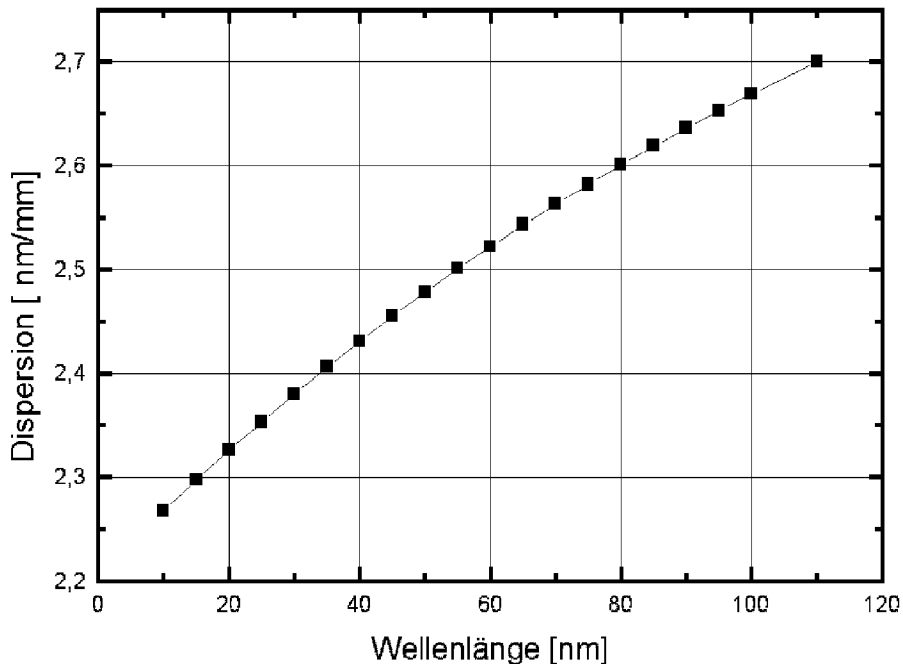


Abbildung 4.1: Dispersion des Gitters in Abhängigkeit von der Wellenlänge (Herstellerangabe)

Zur elektronischen Erfassung der phosphoreszierenden Emission diente eine CCD Kamera mit einem rückseitig beleuchteten und gedünnten („thinned backside-illuminated“) CCD Chip, mit dem es theoretisch möglich ist das Spektrum direkt zu messen. Da das Spektrum in Reflexion der Laserstrahlung aufgenommen wird, wurde eine direkte Messung aus Sicherheitsgründen zunächst nicht durchgeführt. Die verwendeten Intensitäten des reflektierten Laserstrahles würden ausreichen den CCD-Chip der Kamera zu zerstören.

Die Abbildung vom Phosphorschirm auf den CCD-Chip erfolgt mit zwei handelsüblichen Objektiven (1 : 1, 2/85 mm) der Marke Canon in der in Abbildung 4.3 gezeigten Anordnung. Diese Art der Anordnung erzeugt eine relativ lichtstarke Abbildung des Phosphorschirms auf die Kamera. Allerdings nimmt die Lichtstärke zu den Rändern der Abbildung ab, so daß ein aufgenommenes Spektrum gegebenenfalls korrigiert werden muß.

In Bild 4.4 ist die Abbildung eines $350\text{ }\mu\text{m}$ großen Pinholes mit aufgeklebtem Gitter ($100\text{ }\mu\text{m}$ Gitterabstand) zu sehen. Dazu wurde das Pinhole mit einer handelsüblichen Quecksilberdampfampe beleuchtet. Da die Korngröße des phosphoreszierenden Pulvers bei ca. $1\text{ }\mu\text{m}$ liegt, ist die Auflösung bei gegebenem Abbildungsmaßstab durch die Pixelgröße von $24,8\text{ }\mu\text{m}$ des CCD-Chips begrenzt.

4. Die durchgeführten Experimente

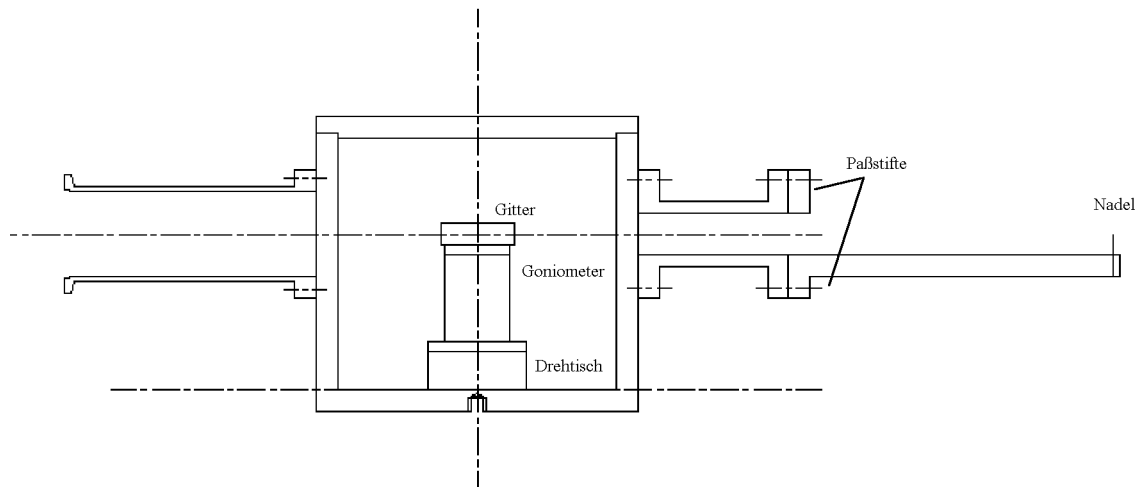


Abbildung 4.2: Experimenteller Aufbau des Spektrometers

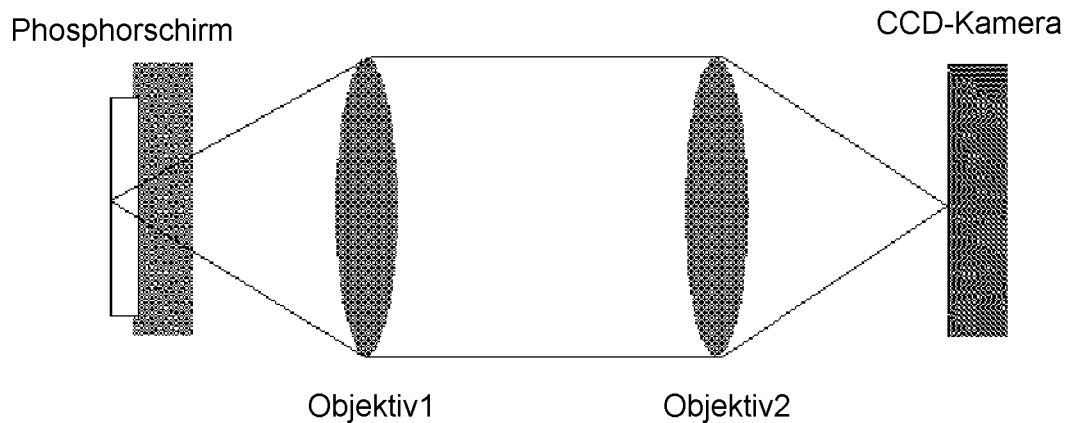


Abbildung 4.3: Anordnung der Abbildungsoptik Phosphorschirm-CCD-Kamera

Zur Justage wird nach der Einstellung des Gitterbildes die Nadel so eingestellt, daß die Nadelspitze in den Bereich des Gitterbildes mit der besten Auflösung zeigt. Danach wird das Pinhole entfernt und die Position der Nadelspitze mit Hilfe von zwei Objektiven in

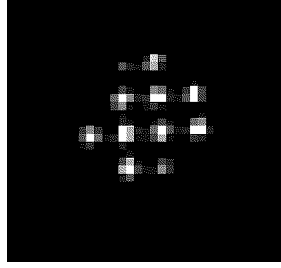


Abbildung 4.4: Abbildung des Gitters in der Nullten Ordnung des Spektrometers auf dem Phosphorschirm (Ausschnitt der CCD-Kamera)

Verbindung mit jeweils einer CCD-Kamera festgehalten. Außerdem wird der zur Justierung benötigte HeNe-Laserfokus auf die Nadelspitze gelegt. Nach dem Entfernen des durch die Paßstifte befestigten Auslegers kann das Target an die Stelle der Nadelspitze gebracht werden. Dazu verwendet man ein Target mit vorhandener Oberflächenstruktur, d.h. ein präpariertes Testtarget oder ein bereits verwendetes Glastarget.

Im nächsten Abschnitt wird nun zunächst der Versuchsaufbau erklärt.

4.1.2 Der Versuchsaufbau

Der Versuchsaufbau mit der Vakuumkammer aus Essen ist in Abbildung 4.5 dargestellt. Da die zur Verfügung stehende Vakuumkammer in Palaiseau größer war, unterscheidet sich der Versuchsaufbau der Messungen in Palaiseau im wesentlichen dadurch, daß der Phosphorschirm direkt mit einem Flansch an der Kammerwand befestigt wurde und die Verbindung mit dem Gittergehäuse des Spektrometers innerhalb der Kammer verlief.

Die Experimente werden im Vakuum bei einem typischen Druck von einigen 10^{-4} mbar durchgeführt.

Der Brechungsindex eines Mediums hängt im allgemeinen Fall von der Intensität der verwendeten Strahlungsquelle ab. Mit Hilfe der nachfolgenden Formel kann der Brechungsindex näherungsweise beschrieben werden [58]:

$$n = n_0 + n_2 I(t) \quad (4.1)$$

Ab einer Intensität von ca. $I = 10^8 \text{ W/cm}^2$ müssen deshalb nichtlineare Effekte bei der Ausbreitung von Licht in Medien berücksichtigt werden [59], und es ist nicht mehr ratsam zur Fokussierung des Lasers eine Linse zu verwenden. Damit soll vermieden werden, daß es bei der Fokussierung zu einer Verschiebung der Wellenfront und damit zur einer Verlängerung der Impulse aufgrund von nichtlinearen Effekten kommt. Ein weiterer Grund für die Verwendung eines Parabolspiegels entsteht durch die kurze Zeitdauer

4. Die durchgeführten Experimente

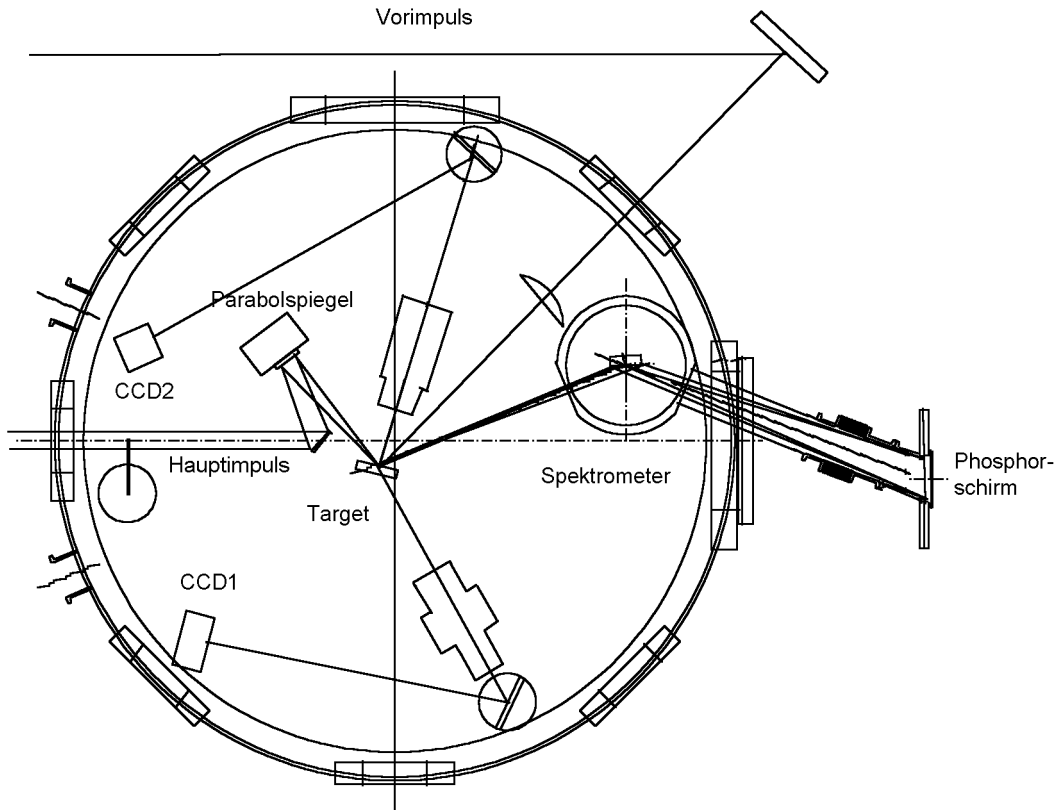


Abbildung 4.5: Experimenteller Aufbau der Vakuumkammer

der Laserimpulse und der damit zusammenhängenden spektralen Breite. Bei der Verwendung einer Linse erzeugt der chromatische Fehler bei den spektral bis zu ca. 40 nm breiten Laserimpulsen eine zeitliche Ausdehnung. Der Hauptimpuls wird aus diesem Grund mit Hilfe eines außeraxialen Parabolspiegels auf die Probe fokussiert. Die Justage eines außeraxialen Parabolspiegels ist im Allgemeinen aufgrund der vorhandenen Freiheitsgrade nicht trivial (siehe z.b. [60]). Von daher ist es notwendig, den Fokus des Parabolspiegels mit einer CCD-Kamera zu überwachen und zu justieren. Die Justage erfolgte zunächst mit einem als Referenzstrahl fungierenden HeNe-Laser. Danach wurden die Ti:Saphir Laserimpulse bei niedriger Energie mit dem HeNe-Laser überlagert. Bei den Messungen in Palaiseau ergab sich allerdings das Problem, daß der Ti:Saphir Laser nur bei evakuierter Vakuumkammer verfügbar war. (Die Anlage ist so aufgebaut, daß die Laserimpulse im Vakuum den Kompressor passieren und die Laufwege bis zur Experimentierkammer ebenfalls evakuiert sind.) Aus diesem Grund war eine Korrektur des Laserfokus nur sehr schwer möglich. Bild 4.6 zeigt einen Laserfokus des Ti:Saph Lasers in Palaiseau. Die Halbwertsbreite betrug $20\text{ }\mu\text{m}$. Die dargestellte Kurve ergibt sich aus der Addition der einzelnen Zeilen der CCD-Kamera und ist somit eine Mittelung über eine Raumrichtung.

In Essen ergab sich die Möglichkeit, den Fokus des Ti:Saphir Lasers besser zu korrigieren. Dabei fällt auf, daß aufgrund der unterschiedlichen Divergenz von HeNe- und

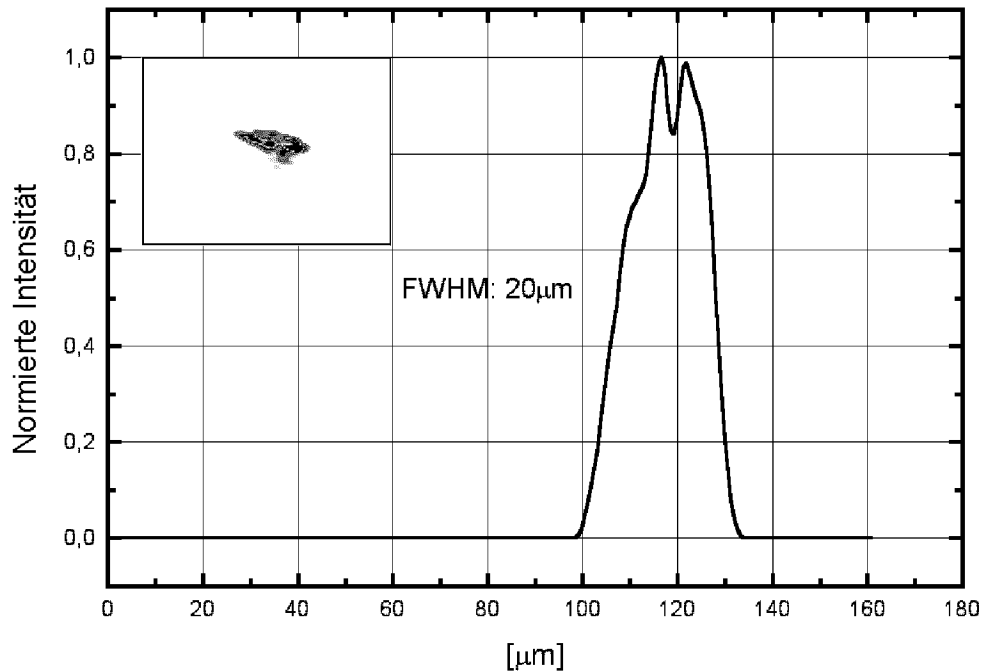


Abbildung 4.6: Fokus des Ti:Saphir-Lasers in Palaiseau

Ti:Saphir-Laser die Fokuspunkte um bis zu 1 mm auseinander liegen können. Dies ist besonders bei einer Änderung der Laserenergie zu beachten, da sich durch thermische Effekte (thermische Linse) im Verstärkernkristall die Divergenz des Laserstrahls ändern kann. Eine energieabhängige Messung ist aus diesem Grund zunächst einmal schwierig, da sich die Fokussierung ändert und die Ergebnisse nicht mehr vergleichbar sind. Abhilfe schafft die Änderung der zeitlichen Synchronisation der Pockelszelle am Ausgang der Verstärkerstufe zur Energievariation. Dadurch wird der Laser gleichbleibend gepumpt und bleibt thermisch stabil. Durch die Änderung der Vorimpulsintensität bleibt eine energieabhängige Messung allerdings nur bedingt aussagekräftig. Abbildung 4.7 zeigt den sich ergebenden Laserfokus nach der Justage in Essen mit einer vollen Halbwertsbreite von 12 μm .

Bei den hier vorgestellten Ergebnissen wurde eine Glasprobe verwendet, welche mit Hilfe von 2 Schrittmotoren ständig verfahren wird, so daß Mehrschußexperimente möglich sind. In Reflexion befindet sich das Spektrometer mit dem „Flatfield“-Gitter (siehe Abschnitt 4.5). Das Spektrum wird auf einen 4 cm großen Phosphorschirm abgebildet und von dort mit der hier nicht eingezeichneten Abbildungsoptik auf den Chip der CCD-Kamera projiziert. Da der CCD-Chip bei 1024 * 1024 Segmenten nur 2,54 cm groß ist, werden zwei Aufnahmen benötigt, um das komplette Spektrum zu erfassen. Aus diesem Grund werden die Meßergebnisse im folgenden in zwei Bereiche, dem XUV-Bereich bis 30 nm und dem Bereich der weichen Röntgenstrahlung (hier bis minimal 10 nm), eingeteilt. Der Laserfokus mit einer Größe von ca. 10 μm wird mittels zweier Objektive in

4. Die durchgeführten Experimente

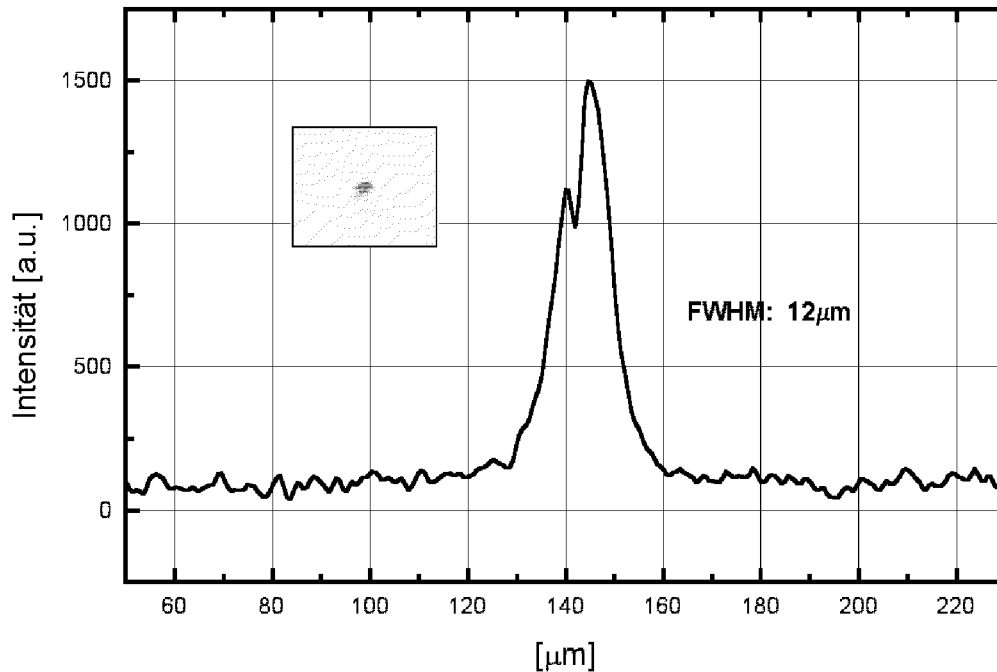


Abbildung 4.7: Fokus des Ti:Saphir-Lasers in Essen

Verbindung mit je einer CCD-Kamera mit einer Genauigkeit von $4\mu\text{m}$ überwacht. Des weiteren ist in Abbildung 4.5 der Strahlengang des Vorimpulses (siehe Abschnitt 4.6) eingezeichnet, welcher mit Hilfe einer Linse auf einem Durchmesser von $100\mu\text{m}$ fokussiert wird.

Der Hauptimpuls wird direkt in die Eingangsöffnung des Spektrometers reflektiert. Um eine Zerstörung des Phosphorschirms und des Gitters sowie Streulichteefekte zu vermeiden, muß daher eine Vorsichtsmaßnahme getroffen werden. Aus diesem Grund wird am Eingang der Vakuumkammer eine runde Metallscheibe in die Mitte des Hauptstrahles gebracht und mit Hilfe des Parabolspiegels auf den Eingang des Spektrometers abgebildet. Es entsteht somit ein Ring-Profil, welches verhindert, daß Licht aus der Fundamentalen des Laserimpulses in das Spektrometergehäuse eindringt. Zu beachten ist, daß das Einbringen der Metallscheibe Beugungseffekte hervorruft, welche die Fokusgröße leicht verändern. Die Verwendung des Phosphorschirms erlaubt es außerdem, zwischen Phosphorschirm und Abbildungsoptik, Filter für den Infrarotbereich zur Unterdrückung der fundamentalen Laserstrahlung bei 800 nm und im UV-Bereich bei 400 nm zur Abschwächung der 2. Harmonischen zu verwenden. Die Hauptemissionslinie des Phosphors liegt bei 545 nm , so daß bei der Verwendung der Filter eine deutliche Reduzierung der Streustrahlung möglich ist. Als Filter wurden ein Infrarotfilter *BG39* und ein Farbfilter *GG475* der Firma Schott mit einer Dicke von jeweils 1 mm verwendet. In Abbildung 4.8 ist die Transmissionskurve dieser Filterkombination aufgetragen.

Die Filter wirken als Bandpaß für die Emission des Phosphorschirms, so daß eine deutli-

4. Die durchgeführten Experimente

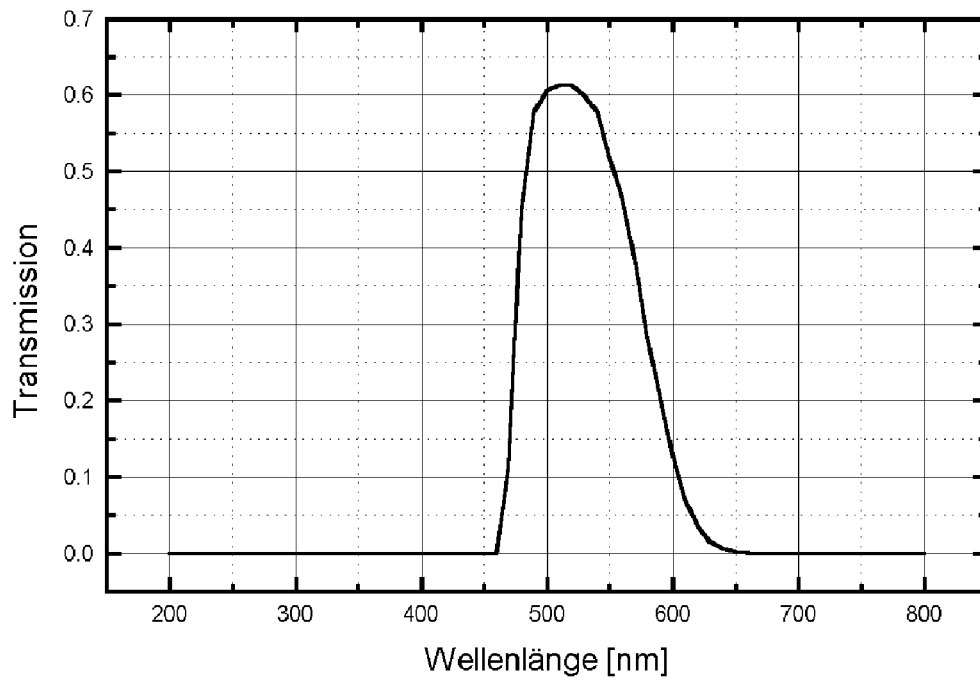


Abbildung 4.8: Transmissionskurve der Filterkombination BG39 und GG475 bei einer Dicke von jeweils 1 mm

che Reduzierung der Streustrahlung ermöglicht wurde. Allerdings beträgt die Transmission bei 545 nm nur noch 55%.

4.2 Der Wellenlängenbereich bis 30 nm

Der Bereich der Wellenlängen von 30 – 100 nm wird als XUV-Bereich bezeichnet. Da bis zu Beginn dieser Arbeit maximal die 18. Harmonische der Lasergrundfrequenz nachgewiesen wurde [14], was einer Wellenlänge von 44,4 nm entspricht, war primär dieser Wellenlängenbereich von Interesse.

4.2.1 Plasmaspektren

Bei der Verwendung von Impulsen mit schlechtem Impulskontrast sowie bei der Defokussierung des Lasers erhält man anstelle der Emission von höheren Harmonischen ein Plasmaspektrum. Auch beim Übergang zu höheren Energien kommt es bei gleichbleibenden Impulskontrast zu einer erhöhten Plasmalinienenerzeugung durch den Impulsuntergrund, der offensichtlich die Erzeugung von kohärenten höheren Harmonischen verhindert.

Abbildung 4.9 zeigt die Plasmalinienemission von einem Glastarget und einem Aluminiumtarget. Bei dem Aluminiumtarget handelt es sich um einen 200 nm dicken Aluminiumfilm, der auf ein Glassubstrat aufgedampft wurde. Aufgenommen wurde dieses Spektrum bei einer Laserenergie von 20 mJ, einer Impulsdauer von 120 fs und einem Druck von 10^{-3} mbar. Dazu wurde die CCD-Kamera 10 Sekunden lang bei einer Wiederholrate von 10 Hz belichtet. Der Impulskontrast lag bei 10^{-3} , was dazu führt, daß Emissionen bei den harmonischen Frequenzen der Laserstrahlung nur sehr schwach zu erkennen sind. Charakteristisch für die Plasmaemissionslinien sind die unregelmäßigen Wellenlängenabstände und spektralen Breiten, die Abhängigkeit vom verwendeten Targetmaterial sowie die unterschiedlichen Intensitäten der einzelnen Emissionslinien. Des weiteren ist ein Ansteigen des Strahlungsuntergrundes im Bereich der kürzeren Wellenlängen zu erkennen, welcher allerdings relativ leicht durch das Ansteigen der Reflektivität des Spektrometersgitters zu erklären ist (siehe dazu Abbildung 4.16).

4.2.2 Emission von hohen Harmonischen

In Frankreich wurden die Versuche mit einer Energie von 50 mJ und einer Impulsdauer von 35 fs bei einem Druck von 10^{-2} mbar durchgeführt. Der Impulskontrast lag bei diesen Messungen im Bereich von 10^{-6} . Die Belichtungszeit wurde so gewählt, daß eine Messung mit 50 Laserimpulsen aufgenommen wurde.

In Abbildung 4.10 ist der Ausschnitt der CCD-Kamera mit dem gemessenen Signal abgebildet. Da der Fokus mit einer Größe von $20\text{ }\mu\text{m}$ im Vergleich zur Segmentgröße der CCD-Kamera von $24,8\text{ }\mu\text{m}$ relativ klein war, wird das Spektrum im wesentlichen auf eine einzelne Zeile des CCD-Chips abgebildet. Ein größerer Ausschnitt wurde notwendig, da eine genauere horizontale Ausrichtung der Kamera nicht möglich war. Die längliche Form der einzelnen Harmonischen ergibt sich aufgrund der Wellenlängendispersion in horizontaler Richtung.

Abbildung 4.11 zeigt das gemessene Spektrum im Wellenlängenbereich bis ungefähr

4. Die durchgeführten Experimente

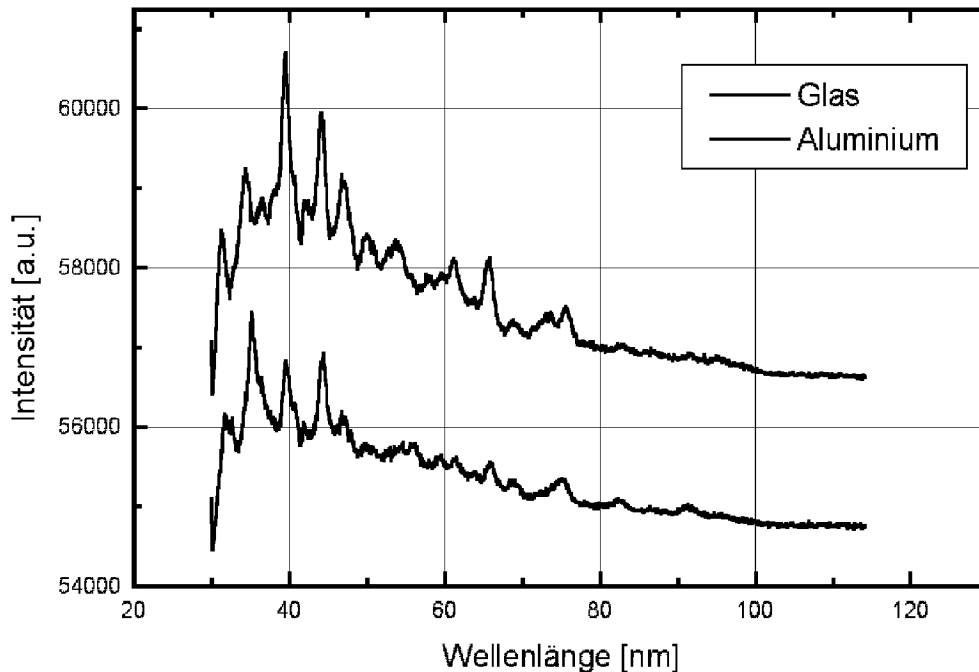


Abbildung 4.9: Plasmaspektrum im Wellenlängenbereich bis 30 nm

Die obere Kurve zeigt die Plasmalinien bei der Verwendung einer Glasprobe, die untere bei der Verwendung einer Aluminiumprobe.



Abbildung 4.10: Bild der Harmonischen auf dem CCD-Chips im Wellenlängenbereich bis 30 nm

30 nm. Das Diagramm ergibt sich aus der Addition der einzelnen Zeilen der CCD-Kamera. Aufgrund der geringen Meßzeit, die uns in Palaiseau zur Verfügung stand, und der mangelnden Erfahrung mit dem Versuchsaufbau ist es bei diesen Messungen nicht gelungen, das Streulicht der 0. Ordnung vollständig zu vermeiden. Abbildung 4.11 zeigt daher das direkt gemessene Spektrum und zusätzlich den Verlauf des Streulicht-hintergrundes. In Abbildung 4.12 wurde das Spektrum aufgrund dieses Untergrundes korrigiert.

Man erkennt Harmonische bis zur 21. Ordnung. Dies ist die höchste Ordnung von Harmonischen, die bisher mit fs-Laserimpulsen an Festkörperoberflächen in Reflexion nachgewiesen wurde. Zwischen der 22. Ordnung und der 23. Ordnung liegt eine stärker ausgeprägte Linienemission, die evtl. schwach vorhandene Linien von höheren Harmonischen überlagert. Auf die möglichen Ursachen dieser Linie wird im nächsten Abschnitt näher

4. Die durchgeführten Experimente

eingegangen. Der steile Abfall des Signals zum kürzeren Wellenlängenbereich ist durch das Ende des CCD-Chips zu erklären.

Für die 8. Harmonische ergibt sich eine Halbwertsbreite von $FWHM = 1,8 \text{ nm}$. Setzt man voraus, daß sich die Intensität der n -ten Harmonischen wie $I_n(t) \propto I(t)^n$ verhält, so gilt für die Halbwertsbreite $\Delta\lambda_{n\omega}$ der n -ten Harmonischen:

$$\Delta\lambda_{n\omega} = \frac{\Delta\lambda_0 \sqrt{n}}{n^2} \quad (4.2)$$

Der Faktor \sqrt{n} berücksichtigt dabei die sich ergebene Verbreiterung des Spektrums aufgrund der kürzeren Impulsdauer.

Es ergibt sich eine Halbwertsbreite von 41 nm für die Fundamentale, was in guter Übereinstimmung mit den Angaben über das Spektrum des Lasers in Palaiseau steht.

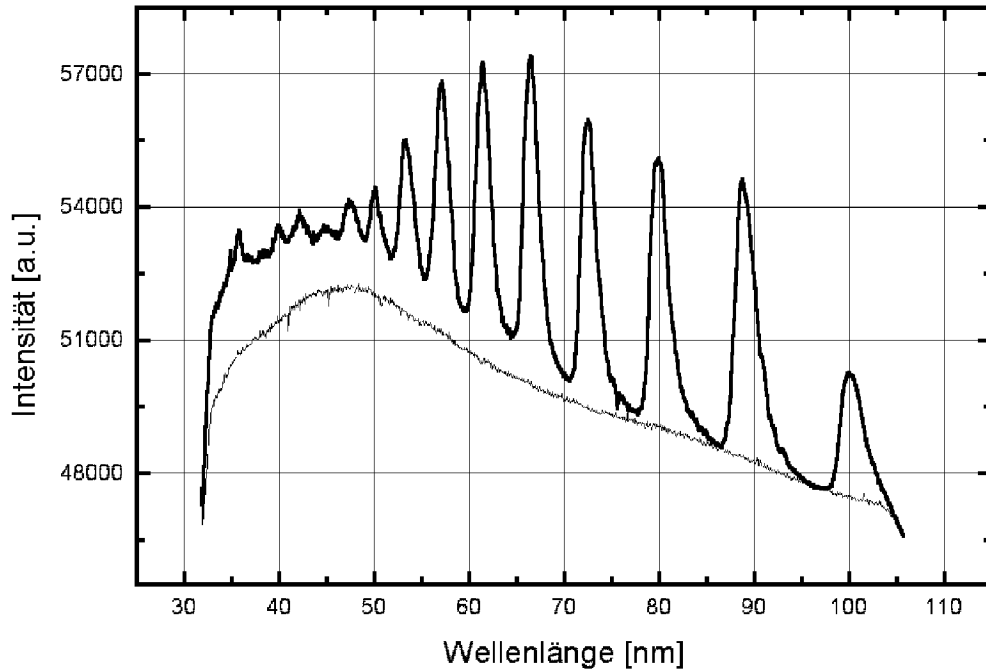


Abbildung 4.11: Spektrum im Wellenlängenbereich bis 30 nm. Zusätzlich ist hier der Verlauf des Streulichtuntergrundes eingezeichnet.

Mit den Laserimpulsen aus Essen läßt sich zunächst das in Abbildung 4.13 dargestellte Ergebnis erzielen. Es wurde mit einer Energie von 24 mJ und einer Impulsdauer von 120 fs mit einem Kontrast von 10^{-4} mit 600 Laserimpulsen gemessen. Da bei diesen Messungen mit größerer Sorgfalt justiert werden konnte, ließ es sich vermeiden, durch Streulicht der 0. Ordnung das Signal zu verfälschen. Im Gegensatz zu den vorher gezeigten Kurven konnte der Graph daher logarithmisch aufgetragen werden. Man sieht also

4. Die durchgeführten Experimente

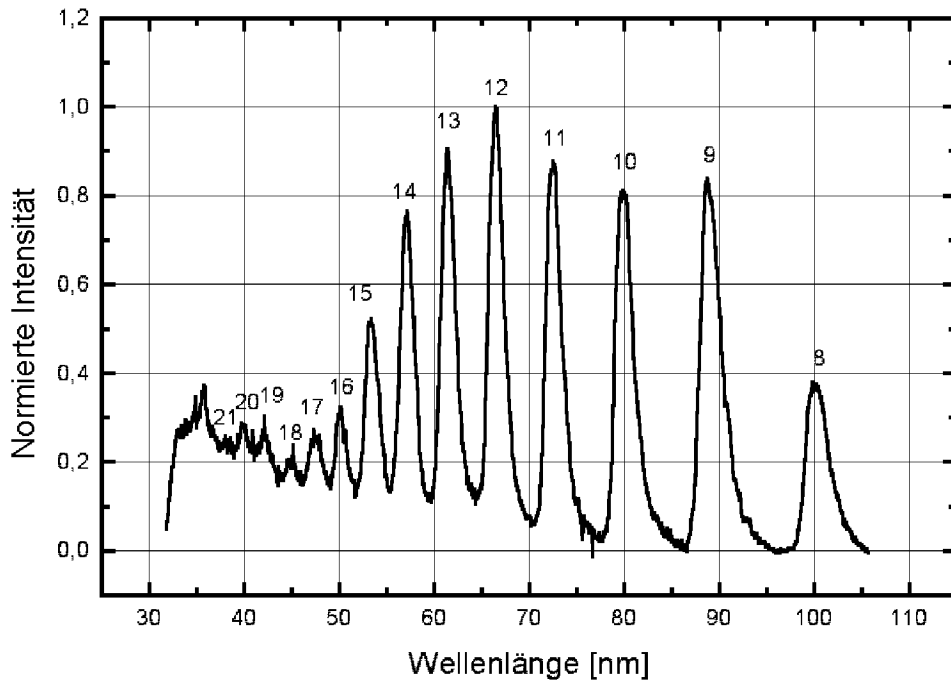


Abbildung 4.12: Korrigiertes Spektrum im Wellenlängenbereich bis 30 nm

einen sehr starken Abfall der Harmonischen zu den höheren Ordnungen. Im Gegensatz zu den Messungen in Palaiseau ist hier die Linienemission bei 36 nm nicht zu erkennen. Man erhält Harmonische bis zur 18. Ordnung, ansatzweise sind die 19. und die 20. Harmonische zu erkennen. Der Vorteil bei diesen Messungen liegt, abgesehen von der uneingeschränkten Zugangsmöglichkeit zum Laser, an der guten Reproduzierbarkeit der Meßergebnisse. Damit wurde die Möglichkeit geschaffen, die in den späteren Abschnitten behandelten Messungen durchzuführen.

Das Ergebnis der Messungen in diesem Wellenlängenbereich ließ in Palaiseau darauf hoffen, auch im kurzwelligen Bereich bis 10 nm Emissionen bei den harmonischen Frequenzen messen zu können. Diese Messungen werden nun im nächsten Abschnitt vorgestellt.

4. Die durchgeführten Experimente

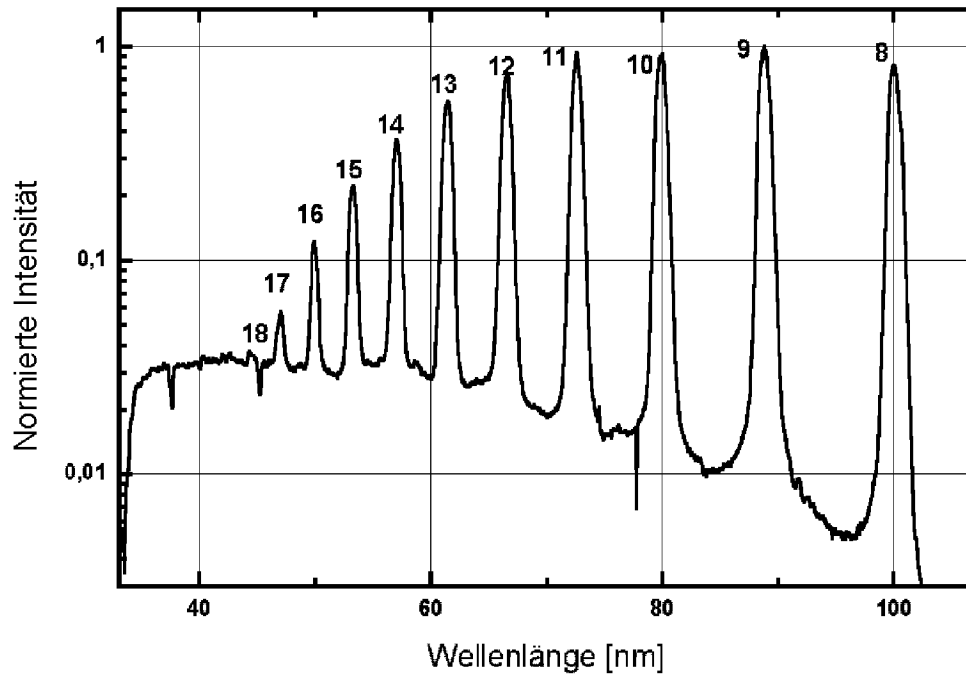


Abbildung 4.13: Spektrum der in Essen gemessenen Harmonischen bis 30 nm

4.3 Der Wellenlängenbereich bis 10 nm

Für die Messung im kurzwelligen Bereich wurde es notwendig einen Aluminiumfilter am Eingang des Spektrometers anzubringen, um das Streulicht der 0. Ordnung zu unterdrücken. Dazu wurde ein Aluminiumfilter der Firma LUXÉL mit einer Dicke von 1500 Å verwendet. Zur besseren Stabilität der dünnen Aluminiumfolie ist der Filter auf einem Stützgitter befestigt, wodurch die Handhabung wesentlich erleichtert wird. Abbildung 4.14 gibt die sich ergebende Kurve für die Messung im Bereich bis ca. 10 nm wieder. Der zunächst ungewohnte Verlauf läßt sich durch die Verwendung des Aluminiumfilters und der Reflektivitätskurve des Spektrometers erklären. Das gemessene Spektrum ist also eine Faltung aus der tatsächlich emittierten Strahlung, der Reflektivitätskurve des Gitters und der Transmission des Aluminiumfilters. Hinzu kommen außerdem noch die Konversionseffizienz des Phosphors und die Abbildungscharakteristik der Objektive.

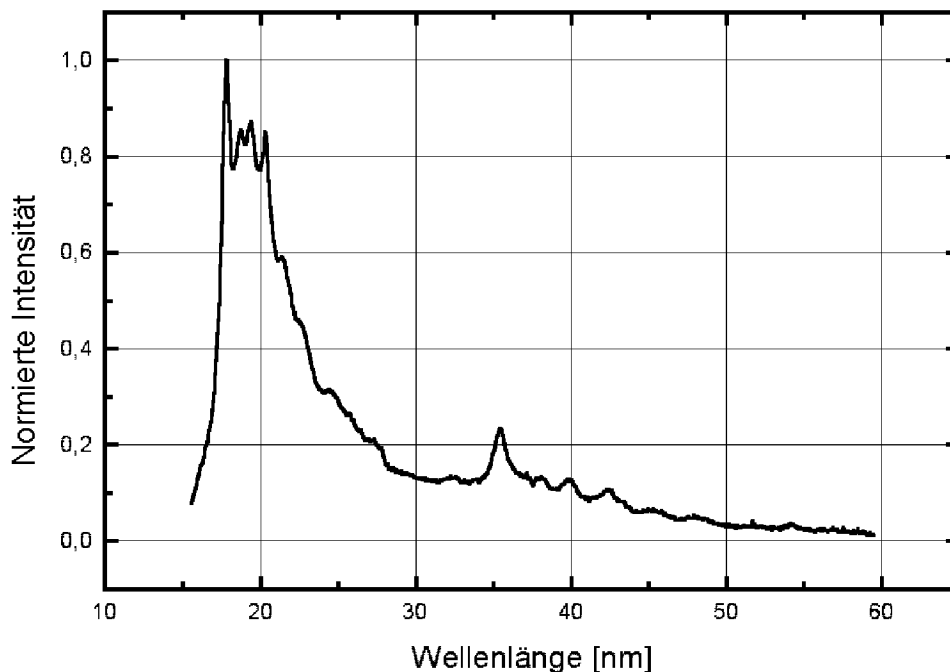


Abbildung 4.14: Spektrum im Wellenlängenbereich bis 10 nm

In Abbildung 4.15 ist die Transmissionskurve des Aluminiumfilters unter Berücksichtigung der Absorption der Restluft in der Vakuumkammer sowie einer angenommenen Aluminiumoxidschicht aufgetragen [61]. Da der Aluminiumfilter längere Zeit an der Luft gelagert wurde, ist davon auszugehen, daß sich eine nicht vernachlässigbare Aluminiumoxidschicht gebildet hat, die die Transmissionseigenschaften des Filters verändert.

In Abbildung 4.16 sind die uns freundlicherweise von der Firma Jobin Yvon überlassenen Werte für die Reflektivität des Gitters aufgetragen. Die Kurve ergibt sich durch die

4. Die durchgeführten Experimente

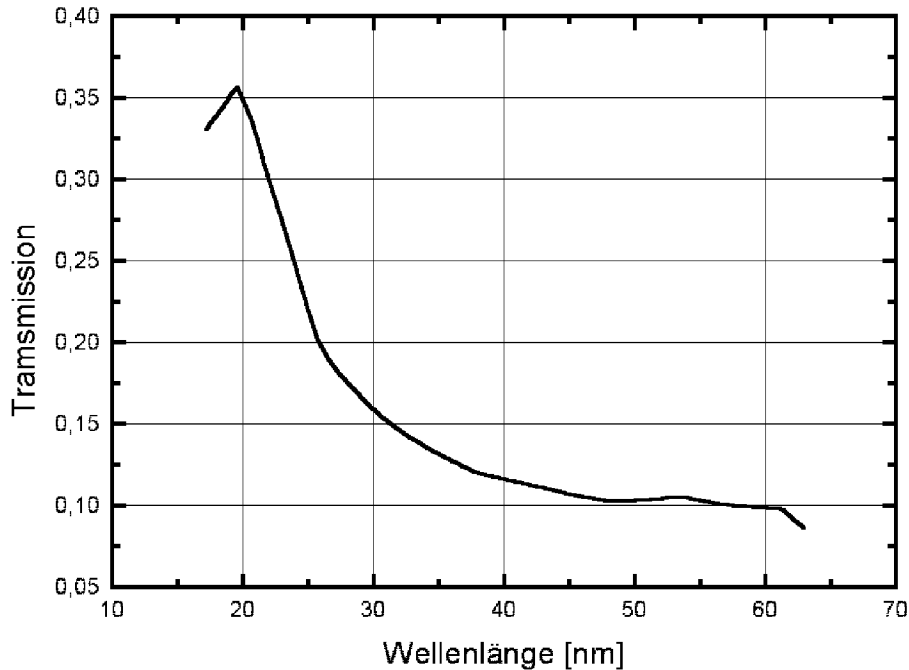


Abbildung 4.15: Transmission des Aluminiumfilters

Anpassung eines Polynomes, welches die Umrechnung der Meßwerte erleichtert. Es ist jedoch nur innerhalb der angegebenen Meßwerte, also zwischen 10 nm und 110 nm, gültig.

Nach Berücksichtigung der Filtertransmission und der Reflektivitätskurve erhält man das in Abbildung 4.17 gezeigte Spektrum. An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, daß die Wellenlängenkalibrierung für diese Messung nicht trivial ist. Aufgrund der Justage, die nur mit der 0. Ordnung vorgenommen werden konnte, ist es möglich, daß sich der Phosphorschirm aufgrund einer Schrägstellung nicht genau in der Abbildungsebene befindet. Dieser Abbildungsfehler nimmt aber in Richtung der niedrigeren Harmonischen zu, welche jedoch klar zu erkennen sind. Ein Problem ergab sich daher nur bei der genauen Bestimmung der Dispersion. Dazu konnten die relativ eindeutig zu bestimmenden Harmonischen bis zur 20. Ordnung sowie die steile Absorptionskante des Aluminiumfilters benutzt werden.

Bei der starken Emissionslinie zwischen der 21. und der 23. Harmonischen bei 35,5 nm handelt es sich nicht um eine Harmonischenemission. Eine mögliche Erklärung ist, daß es sich dabei um eine Emission bei der Plasmafrequenz handelt. Bei einer nahezu vollständigen Ionisation würde sie für eine Glasdichte von $\varrho = 2,5 \text{ kg/dm}^3$ bei ca. 38 nm liegen, d.h. man würde die Linie eher bei größerer Wellenlänge erwarten. Die verwendeten Intensitäten von nahezu 10^{18} W/cm^2 , welche den Bereich markieren ab dem man relativistische Effekte nicht mehr vernachlässigen darf, könnten dazu führen, daß aufgrund der hohen ponderomotorischen Kraft das Plasma komprimiert wird, was zu einer Erhöhung

4. Die durchgeführten Experimente

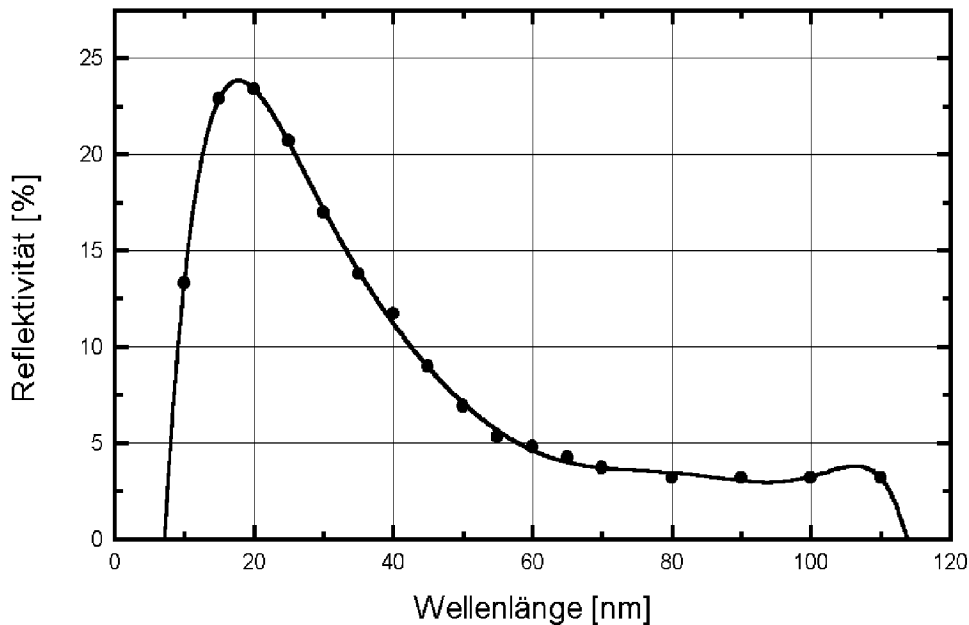


Abbildung 4.16: Reflektivität des Gitters

der Dichte und damit zu einer Erniedrigung der Plasmafrequenz beiträgt. Teubner et al. [62] vermuten, daß es sich um eine Emission bei der doppelten Plasmafrequenz aus einem Bereich des Plasmas mit niedrigerem Ionisationsgrad handelt. Dabei würde man eine etwas schwächere Emission bei der Plasmafrequenz, hier bei 71 nm, erwarten, die allerdings durch den geringen Abstand zur 11. Harmonischen direkt in Reflexion nicht nachzuweisen ist.

Stark ausgeprägt sind im niedrigen Wellenlängenbereich nur die ungeraden Harmonischen zu sehen. Der stärkere Untergrund bei den Linien um 20 nm kann seine Ursache in der Emission von Plasmastrahlung haben. In diesem Fall ist es nicht ausgeschlossen, daß es sich bei diesen Linien um Plasmalinien wie z.B. *O IV* handelt. Da die Reflektivität des Gitters sowie die Transmission des Aluminiumfilters in diesem Bereich zunimmt, könnte es sich theoretisch auch um die ungeraden Harmonischen bis zur 45. Ordnung handeln.

Eine mögliche Erklärung, warum im niedrigen Wellenlängenbereich nur die ungeraden Harmonischen zu erkennen sind, liegt in den unterschiedlichen Erzeugungsmechanismen. Wie z.B. das Modell des bewegten Spiegels (Kapitel 2.1) zeigt, werden die Harmonischen bei p-polarisiertem Licht durch die transversale und die longitudinale Bewegung der Elektronen erzeugt. Für höhere Energien wird der Beitrag $\mathbf{v} \times \mathbf{B}$ der Lorentzkraft dominierend. Das ist aber der Term, der die Bewegung mit der Frequenz $2\omega_0$ erzeugt, also für die Erzeugung von ungeraden Harmonischen verantwortlich ist. Zunächst würde man

4. Die durchgeführten Experimente

dann allerdings auch ein stärkeres Anwachsen der niedrigeren ungeraden Harmonischen gegenüber den geraden Harmonischen erwarten. Möglicherweise tritt dieser Effekt aber für die höheren Harmonischen früher auf, d.h. der Abfall in der Intensität der ungeraden Harmonischen für steigende Ordnung könnte bei größerem $\mathbf{v} \times \mathbf{B}$ -Term schwächer sein als für die geraden Harmonischen.

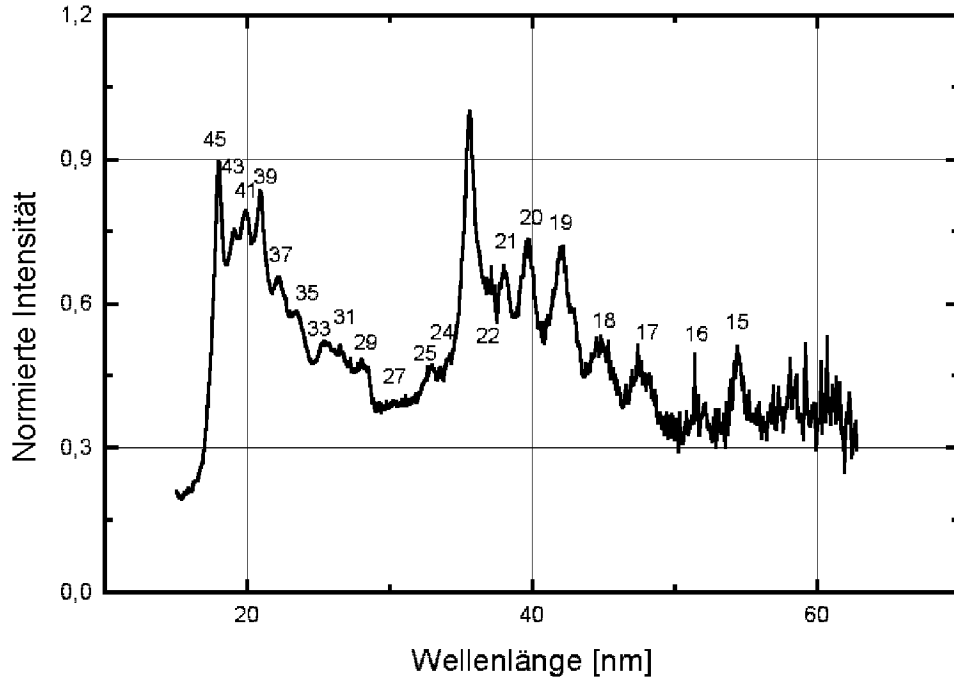


Abbildung 4.17: Korrigiertes Spektrum im Wellenlängenbereich bis 10 nm

Um weiteren Aufschluß über die Linienstrahlung im kurzwelligen Bereich zu erhalten, wurde auch in Essen eine Messung im kurzwelligen Bereich durchgeführt. Durch die großzügige Blockierung der 0. Ordnung war es möglich, bei dieser Messung auf den Einsatz des Aluminiumfilters zu verzichten.

Abbildung 4.18 zeigt das Spektrum der Messung aus Essen. Diese Aufnahme wurde bei einer Impulsdauer von 120 fs, einem Kontrast von 10^{-4} und einer Energie von 10 mJ durchgeführt. Von daher ist diese Messung nur bedingt mit der Aufnahme aus Palaiseau zu vergleichen. Zu erkennen sind Harmonische bis zur 15. Ordnung, danach erhält man einen starken Anstieg der Hintergrundstrahlung und ein durch die Blockierung bedingtes Abschneiden des Spektrums bei ca. 20 nm. Deutlich zu erkennen sind unregelmäßige Emissionslinien im Bereich zwischen 20 nm und 40 nm. Abbildung 4.19 zeigt das aufgrund der Reflektivitätskurve des Gitters korrigierte Spektrum.

Im Unterschied zur Messung aus Palaiseau ist auch im korrigierten Spektrum ein Ansteigen des Untergrundes im Bereich um 30 nm zu erkennen. Dies kann seinen Ursprung

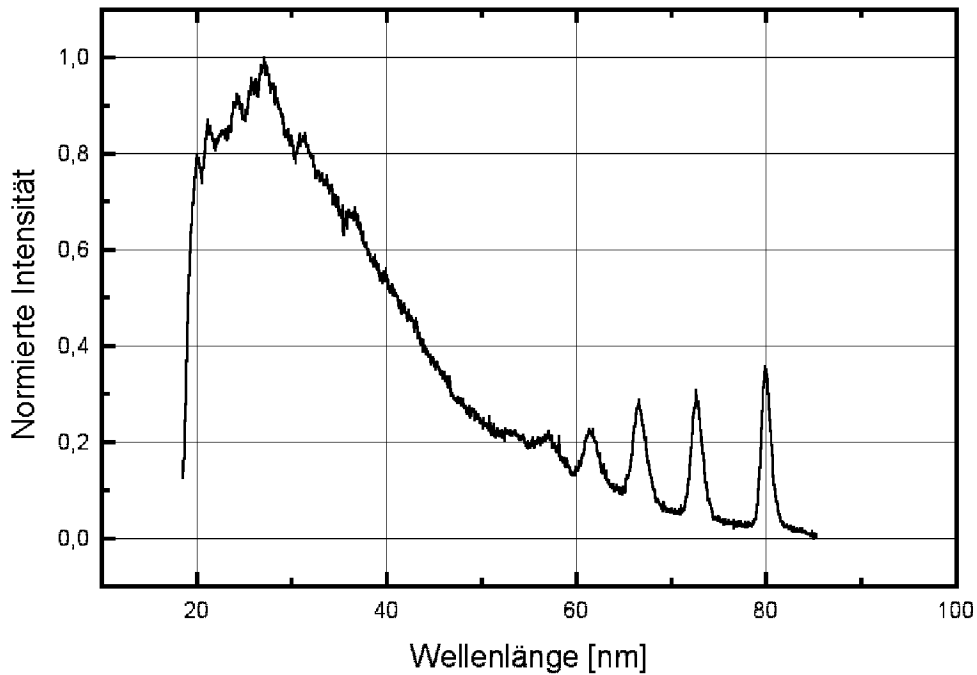


Abbildung 4.18: Spektrum aus Essen im Wellenlängenbereich bis 10 nm

in der Erzeugung von Plasmastrahlung haben, was auch die unregelmäßigen Linienemission in diesem Bereich erklärt. Aus diesem Grund kann vor allem die Regelmäßigkeit der in Abbildung 4.17 auftretenden Linien als ein Indiez für höhere Harmonische in diesem Wellenlängenbereich gewertet werden. Ein weiterer Unterschied ergibt sich durch das Fehlen der Plasmaemissionslinie bei der Messung in Essen. Da diese Linie auch bei früheren Messungen in Palaiseau bei der Verwendung von längeren Laserimpulsen aufgetreten ist, wird vermutet, daß sie in Essen aufgrund des geringeren Impulscontrast und der daher verwendeten niedrigeren Intensität nicht zu erkennen ist.

4. Die durchgeführten Experimente

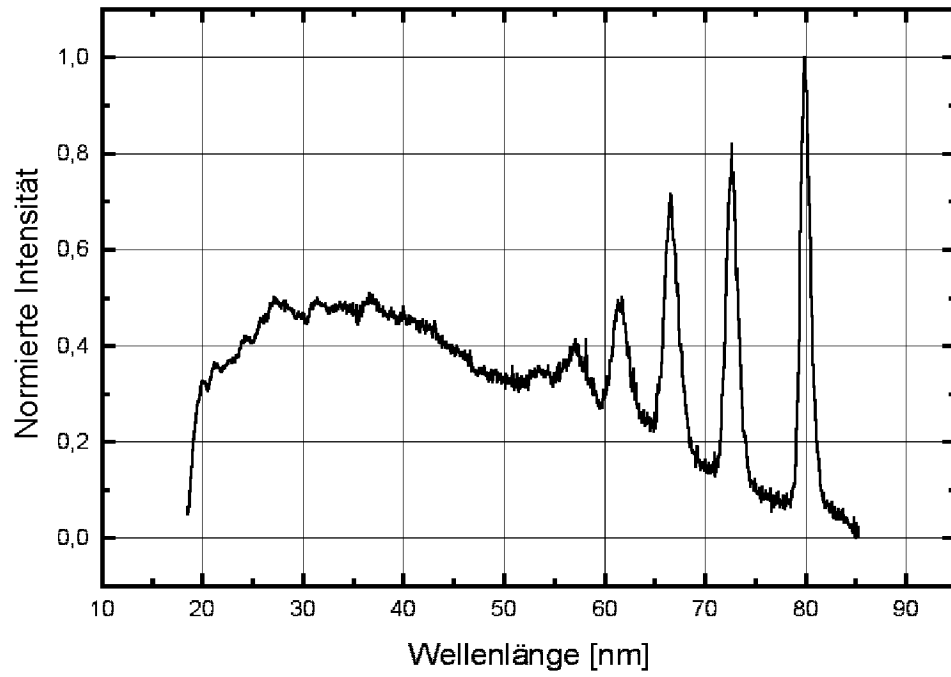


Abbildung 4.19: Korrigiertes Spektrum aus Essen im Wellenlängenbereich bis 10 nm

4.4 Untersuchung der Kohärenz

Ein weiterer Punkt, der im Rahmen dieser Arbeit untersucht wurde, war die Frage nach der Kohärenz der entstehenden Harmonischen und die Größe des vorhandenen Raumwinkels.

4.4.1 Das Transmissionsexperiment

Als Transmissionstarget wurde eine auf eine Lochrasterplatte aufgebrachte Lexanfolie (Polycarbonat) mit einer Dicke von 70 – 120 nm benutzt. Polycarbonat besteht im wesentlichen aus Kohlenstoff, Sauerstoff und Wasserstoff und hat eine Dichte von $\rho = 1,2 \text{ kg/dm}^3$. Zur Durchführung der Messung wurde mit Hilfe einer CCD-Kamera die Targetposition überwacht. Aufgrund des Rasters mit einer Lochgröße von 1 mm konnte kein Mehrschußexperiment durchgeführt werden, so daß eine Aufnahme eines Spektrums in Transmission nicht möglich war. Abbildung 4.20 zeigt den abgeänderten Versuchsaufbau ohne Spektrometer. In Transmission befindet sich direkt hinter dem Target der Phosphorschirm, welcher mit der Abbildungsoptik auf die CCD-Kamera abgebildet wird. Der Filter blockt die transmittierte Strahlung der Fundamentalen und der zweiten Harmonischen.

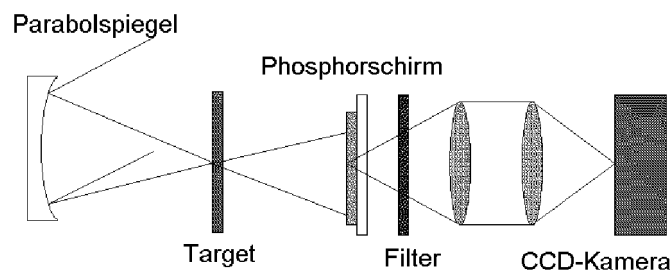


Abbildung 4.20: Versuchsaufbau zur Messung der räumlichen Kohärenz der Harmonischen mit einem Transmissionstarget

Bei der Bestrahlung des Targets mit dem Laser wird der größte Teil der Infrarotstrahlung an der Oberfläche der Folie reflektiert, und in Transmission kann die Strahlung der höheren Harmonischen auf dem Phosphorschirm nachgewiesen werden. Dabei wird vorausgesetzt, daß die Konversionseffizienz des Phosphors für die restliche Strahlung der Fundamentalen und der zweiten Harmonischen vernachlässigbar klein ist. Bild 4.21 zeigt die sich ergebende Aufnahme des Phosphorschirms. Es ist deutlich eine im Zentrum gebündelte Strahlung zu erkennen.

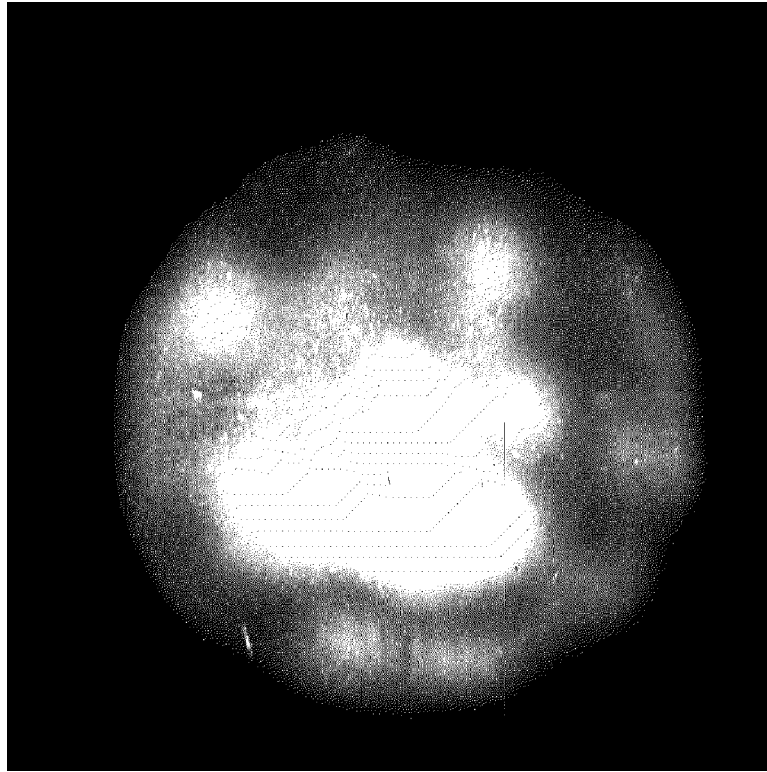


Abbildung 4.21: Bild des Phosphorschirms bei der Verwendung eines Transmissionstargets

Bei der Bestrahlung des Targets mit dem Laser wird die Folie zerstört, so daß bei einer zweiten Aufnahme der Laserstrahl direkt auf den Phosphorschirm fällt. Abbildung 4.22 gibt diese Situation wieder, auf der die im Strahlengang eingebrachte Metallscheibe mit ihrer kreuzförmigen Aufhängung zu sehen ist. Von daher ist auszuschließen, daß es sich bei der in Abbildung 4.21 nachgewiesenen Strahlung um die Fundamentale handelt, deren Konversion bei der direkten Bestrahlung des Phosphors aber nicht mehr zu vernachlässigen ist.

Aufgrund dieser Messung kann davon ausgegangen werden, daß eine eventuell entstehende Strahlung höherer Harmonischer in Transmission um die Achse des erzeugenden Laserstrahles gebündelt ist. Des weiteren ist zu bemerken, daß die nachgewiesene Strahlung durch das erzeugte Plasma transmittiert wurde, was eine Frequenz oberhalb der Plasmafrequenz erwarten läßt.

4.4.2 Das Reflexionsexperiment

In Palaiseau wurde auch ein erstes Experiment zur Messung der Winkelverteilung der Harmonischen in Reflexion durchgeführt. Der Versuchsaufbau ist in Abbildung 4.23 dar-

4. Die durchgeführten Experimente

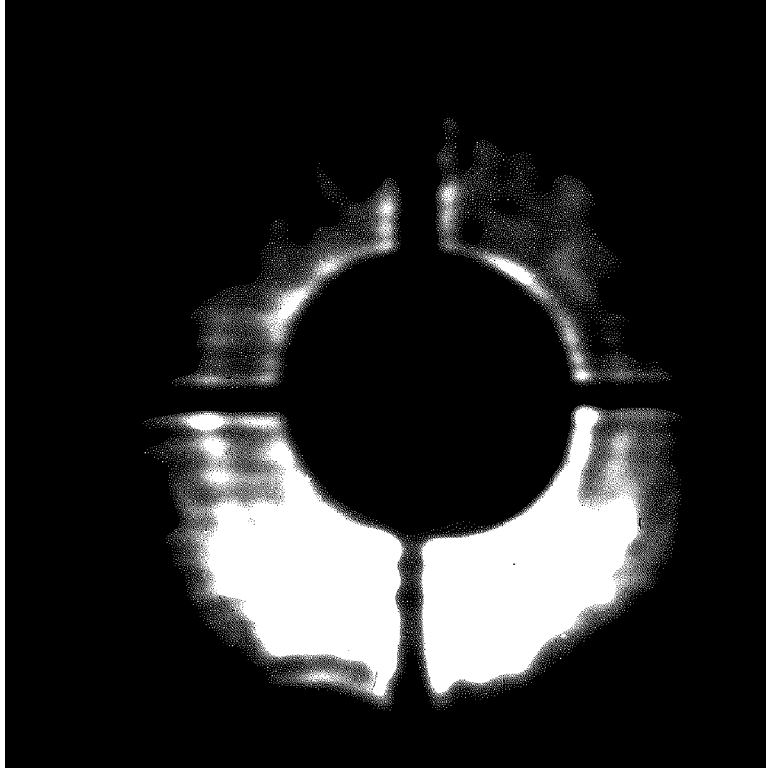


Abbildung 4.22: Bild des Phosphorschirms ohne Transmissionstarget

gestellt. An die Stelle des Spektrometers wird direkt der Phosphorschirm gebracht, dessen Bild auf die CCD-Kamera abgebildet wird. Der Filter blockt die reflektierte Strahlung der Fundamentalen und die Emission der zweiten Harmonischen.

In Abbildung 4.24 sieht man das sich ergebene Bild des Phosphorschirms. Man erkennt eine relativ stark gebündelte Strahlung um das Zentrum des Schirms, welche sich ähnlich verhält, wie die mit dem Auge erkennbare Strahlung der zweiten Harmonischen. Sie ist im wesentlichen rotationssymmetrisch um die Achse zentriert. Dieses Resultat läßt vermuten, daß sich die Harmonischen stark gebündelt in Reflexionsrichtung ausbreiten.

In Essen ergab sich die Möglichkeit die Winkelverteilung der Harmonischen genauer zu untersuchen. Dazu wurde der in Abbildung 4.25 gezeigte Versuch durchgeführt. Das Target wurde leicht gedreht, so daß die Position des Spektrometers relativ zum reflektierten Strahl variiert.

Voraussetzung zur Durchführbarkeit dieses Versuches war die hohe Reproduzierbarkeit der Laserimpulse sowie ein stabil laufendes Lasersystem. Der Targethalter ließ sich nur bei belüfteter Vakuumkammer drehen. Die Position des Targets wurde dabei mit den verwendeten CCD-Kameras überwacht. Das Abpumpen der Kammer und das Verstellen des Targetverschiebers erfordern einen Zeitaufwand von ca. 1 h, so daß eine Stabilität

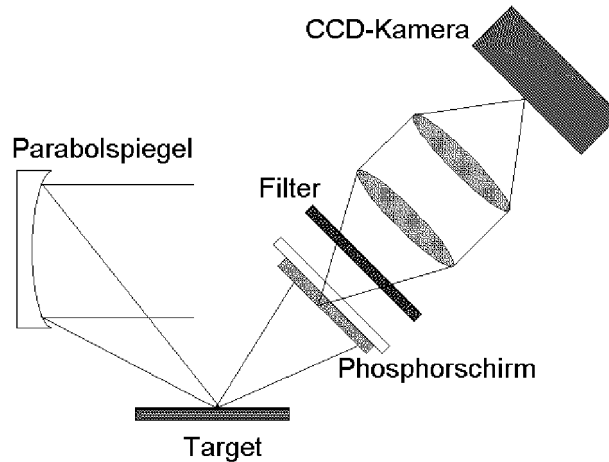


Abbildung 4.23: Versuchsaufbau zur Messung der räumlichen Kohärenz der Harmonischen in Reflexion

des Systems über einige Stunden gewährleistet sein muß. Der „normale“ Einfallswinkel beträgt 55° , so daß durch Rotation des Targethalters etwas steilere Einfallswinkel erzeugt wurden. Mit kleiner werdenden Winkel verringert sich die Intensität der Harmonischen, wie in Abbildung 4.26 zu erkennen ist. Die Messung bei 54° wurde als letzte Messung dieser Reihe durchgeführt und zeigt ein leichtes Abweichen des Untergrundes von den restlichen Messungen. Es muß daher angenommen werden, daß sich die Parameter des Lasers zu diesem Zeitpunkt leicht geändert haben.

Aufgrund der aufwendigen Messung ist der sich ergebene Fehler bei der Bestimmung der Halbwertsbreite relativ hoch. In Abbildung 4.27 ist die bei 55° normierte Intensität der verschiedenen Harmonischen als Funktion der Winkeländerung aufgetragen. Es ergibt sich eine Halbwertsbreite von etwa 2° . Aufgrund der in Palaiseau gemachten Beobachtung kann von einer Rotationssymmetrie ausgegangen und somit der Raumwinkel der Emission bestimmt werden.

Die erzeugte Strahlung bei den harmonischen Frequenzen der Grundlaserfrequenz ist somit also im Gegensatz zu den Experimenten mit ps-Laserimpulsen stark gebündelt. Des weiteren ist zu erkennen, daß der Öffnungswinkel für die höheren Harmonischen etwas kleiner wird. Zum Vergleich ist in Abbildung 4.27 die Lasergrundwelle mit dem Öffnungswinkel von $7,3^\circ$ eingezeichnet. Geht man wie zuvor davon aus, daß die Intensität der n -ten Harmonischen sich wie $I_n(t) \propto I(t)^n$ verhält folgt unmittelbar, daß die Winkelverteilung der höheren Harmonischen gebündelter als die Lasergrundwelle erfolgt. Aufgrund dieser Messung kann davon ausgegangen werden, daß die Emission beugungsbegrenzt, also stark räumlich kohärent erfolgt.

4. Die durchgeführten Experimente

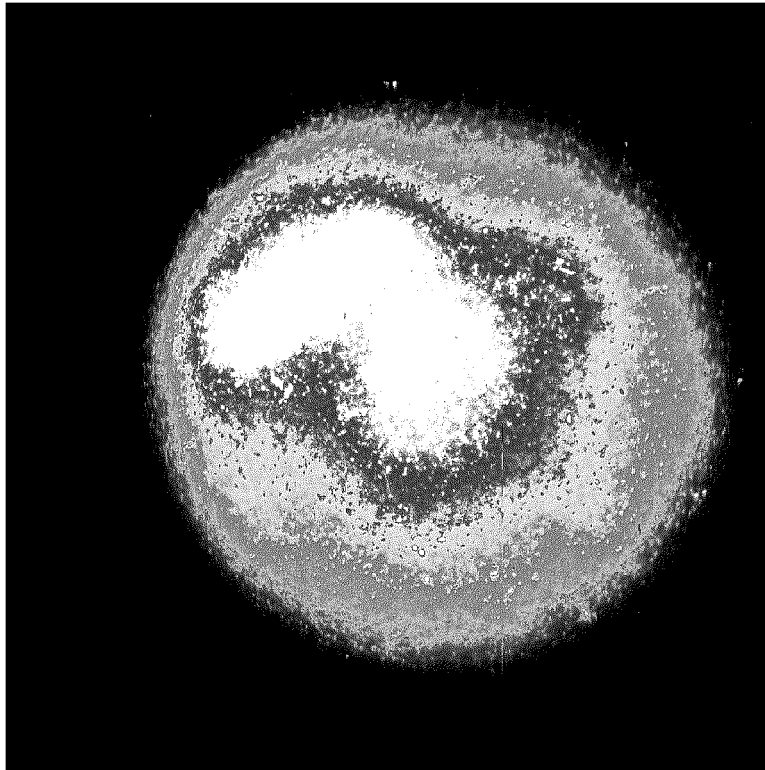


Abbildung 4.24: Bild der Strahlung auf dem Phosphorschirm in Reflexionsrichtung

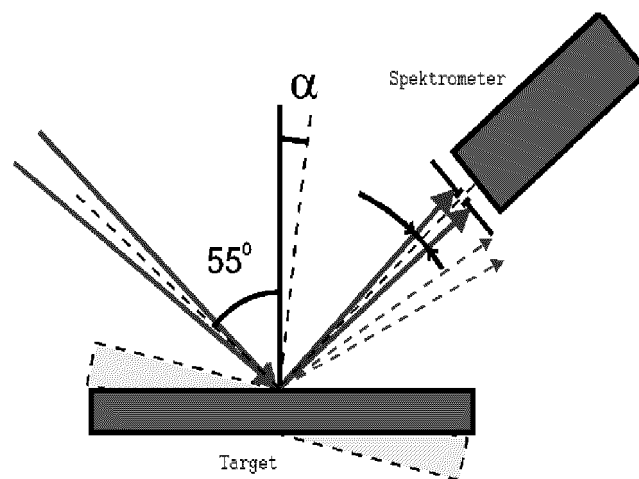


Abbildung 4.25: Versuchsaufbau zur Messung der Winkelabverteilung

4. Die durchgeführten Experimente

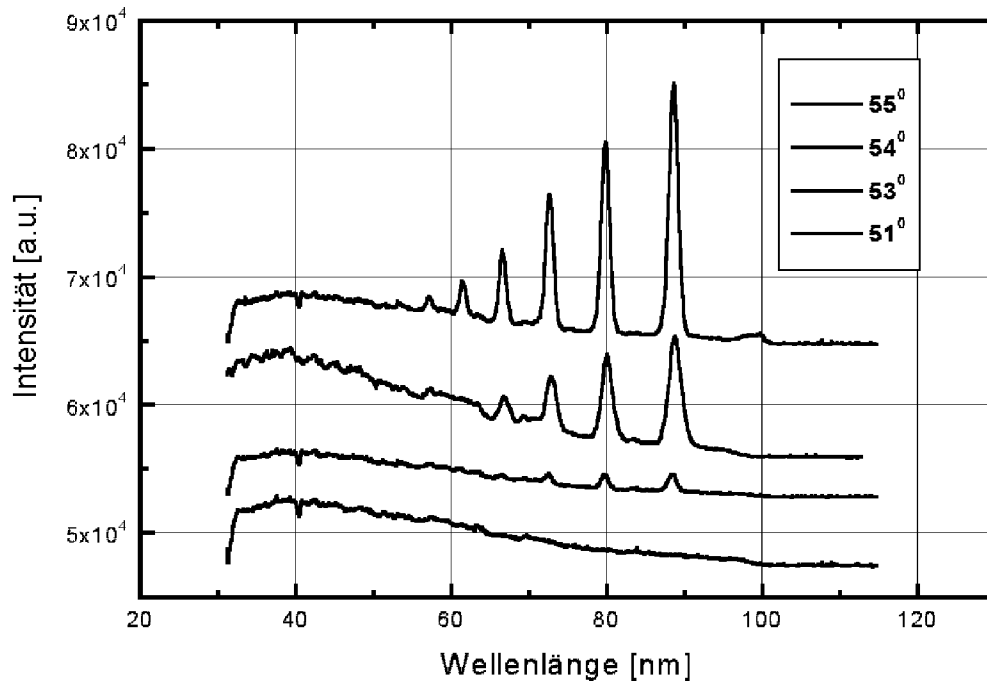


Abbildung 4.26: Harmonischenspektrum bei Änderung der relativen Lage des Spektrometers

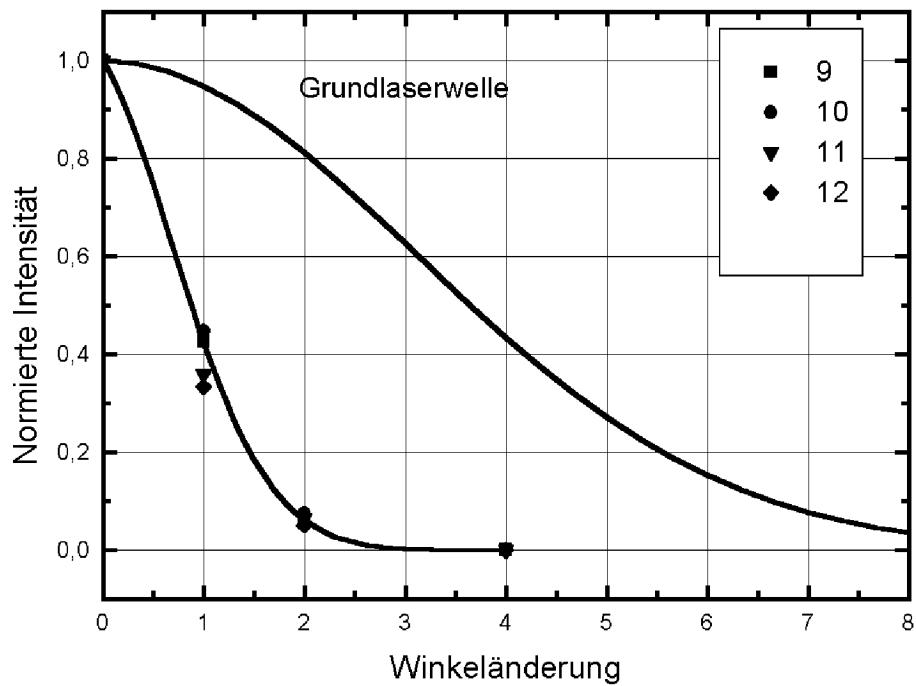


Abbildung 4.27: Bestimmung der Halbwertsbreite der Harmonischenemission
Eingezeichnet sind die Intensitäten von der 9. bis zur 12. Harmonischen und der Öffnungswinkel der Lasergrundwelle.

4.5 Bestimmung der Konversionseffizienz

Ein wichtiger Punkt bei der Erzeugung von hohen Harmonischen stellt die Konversionseffizienz der Laserenergie in die höheren Ordnungen dar. Die Verwendung einer Hohlkathodenplasmaentladung und eines VUV empfindlichen CCD-Chips gestattete die Bestimmung der Konversionseffizienz des Phosphorschirms. Dadurch entsteht die Möglichkeit, die Anzahl der erzeugten Photonen abzuschätzen.

Aus diesem Grund wird im nächsten Abschnitt zunächst kurz die Plasmaentladungslampe und die verwendete CCD-Kamera beschrieben, bevor im darauf folgenden Abschnitt die Konversionseffizienz für die 10. und 15. Harmonische berechnet wird.

4.5.1 Die Hohlkathodenlampe und der CCD-Chip

Die Hohlkathodenlampe ist eine intensive Strahlungsquelle für den VUV-Bereich. Durch die Variation der Arbeitsgase sowie des Kathodenmaterials sind die Emissionslinien in einem größeren Wellenlängenbereich auswählbar [63, 64]. Verwendet wurde die in Abbildung 4.28 gezeigte Hohlkathodenentladungslampe mit einer Aluminiumkathode und Argon als Arbeitsgas. Dadurch werden verschiedene Linienemissionen im Bereich von ca. 16 nm bis 110 nm erzeugt.

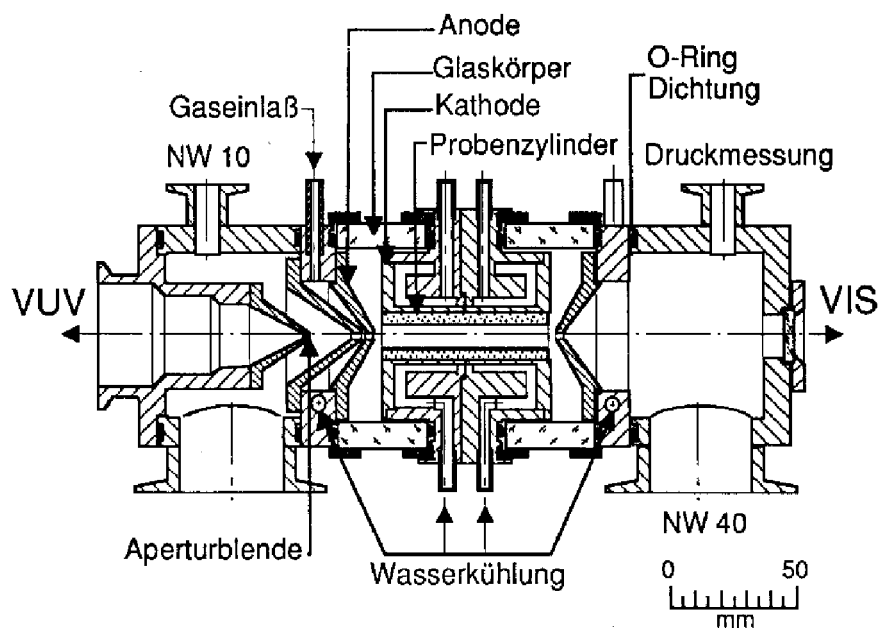


Abbildung 4.28: Aufbau der Hohlkathodenlampe

Die Strahlstärke der Hohlkathodenlampe wird durch die Wahl der äußeren Parameter wie Arbeitsgasdruck, Entladungsspannung und Entladungsstrom konstant gehalten. Die Lampe wurde bei einer Spannung von 500 V und einem Strom von 1 A betrieben, wobei

4. Die durchgeführten Experimente

der Arbeitsdruck des Argons mit einem Feinreguliertventil eingestellt werden konnte. Wie bereits eingangs erwähnt, ist es möglich mit der verwendeten CCD-Kamera der Firma Princeton, das Spektrum direkt zu messen. Diese Kamera verwendet den CCD-Chip TK1024T der Firma SiTe, d.h. einen rückseitig gedünnten Chip. Die Eindringtiefe in Siliziumoxid der hier zu messenden Strahlung im Bereich unter 100 nm beträgt nur einige 10 nm. Daher ist die Verwendung eines frontseitig belichteten CCD-Chips nicht möglich, weil die Strahlung in der vorhandenen Oxidschicht vollständig absorbiert würde. Durch die rückseitige Belichtung eines gedünnten CCD-Chips ist man in der Lage Strahlung nachzuweisen, die nur die sich natürlich ergebene ca. 10 nm dünne Siliziumoxidschicht an der Grenzfläche zur aus Silizium bestehenden Nachweiszone durchdringen muß.

Zunächst wurde die Hohlkathodenentladungslampe an die Vakuumkammer (siehe Abbildung 4.5) angeflanscht, um damit das Spektrometer in der ursprünglichen Versuchsanordnung zu beleuchten. Es wurde mit Hilfe der CCD-Kamera ein Spektrum der Hohlkathodenlampe unter Verwendung des Phosphorschirms, der Filter und der Abbildungsoptik aufgenommen. Danach wurde der Phosphorschirm entfernt und die CCD-Kamera direkt an die Stelle des Phosphorschirms gebracht. Dazu wurde der Vakuumflansch der Kamera entfernt und mit Hilfe eines Wellschlauches eine direkte einstellbare Verbindung mit der Vakuumkammer geschaffen. Eine seitliche Verschiebung der Kamera war aber nicht mehr möglich, so daß aufgrund der Größe des CCD-Chips nur ein Teilspektrum (10 nm bis 60 nm) aufgenommen werden konnte.

In Abbildung 4.29 sind die relativen Intensitäten der eindeutig nachzuweisenden Linien des Hohlkathodenlampenspektrums für die Messung in der ursprünglichen Versuchsanordnung (Phosphor) und der direkten Messung mit der Kamera (CCD) aufgetragen. Zu erkennen ist, daß die direkte Messung um etwa 3 Größenordnungen empfindlicher ist als die Messung unter Verwendung des Phosphorschirms, der Filter und der Abbildungsoptik. Eine direkte Messung des Harmonischenspektrums ist aber nur bei der Verwendung eines Aluminiumfilters für die höheren Ordnungen möglich, da ansonsten das Weglassen der Filter ein zu hohes Streulicht erzeugen würde. Aber auch die direkte Messung mit Aluminiumfilter ist mit der Gefahr verbunden, daß bei einer möglichen Beschädigung des Aluminiumfilters der reflektierte Laserimpuls direkt auf den CCD-Chip fällt und diesen zerstört.

4.5.2 Berechnung der Konversionseffizienz

Mit den voran genannten Ergebnissen läßt sich nun die Energiekonversion der Laserstrahlung in Strahlung der höheren Ordnungen berechnen.

Mit Hilfe der gemessenen Halbwertsbreite läßt sich die absolute Konversion der Laserenergie in die Strahlung der jeweiligen Harmonischen angeben. Aus der Messung 4.13 erhält man für die Strahlung der 10. Harmonischen eine Zählrate von 190.000 in einer Minute, d.h. $Z = 317$ pro Impuls bei einer Energie von $W_0 = 24$ mJ. Die Gittereffizienz bei 80 nm beträgt $\eta_g = 0,05$. (Herstellerangabe) Der Unterschied zur Messung ohne Phosphor liegt bei $\eta_{phos}/\eta_{ccd} = 10^{-3}$, die Quanteneffizienz des CCD Chip bei $\eta_q = 0,2$ [65].

4. Die durchgeführten Experimente

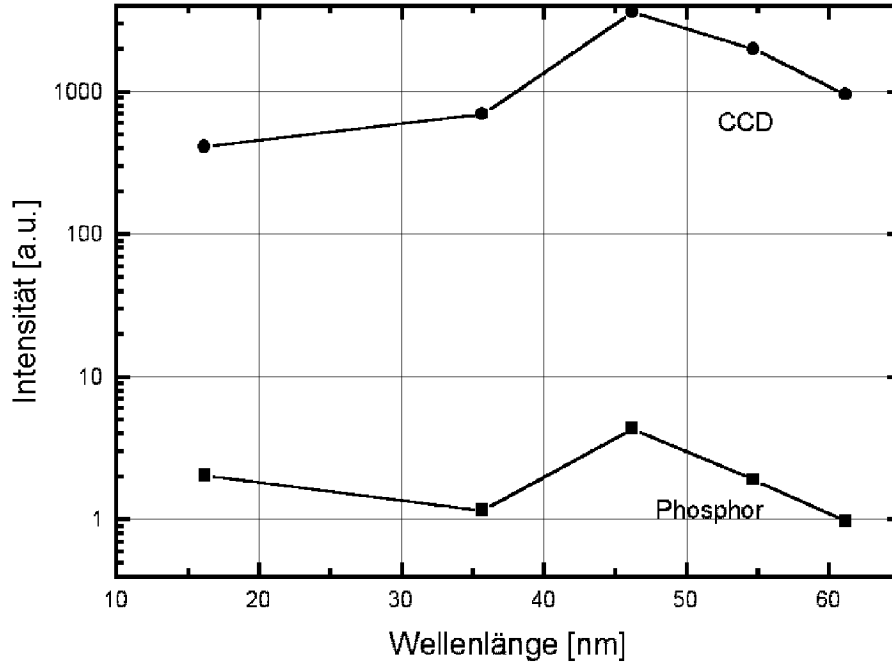


Abbildung 4.29: Vergleich des Signals auf dem Phosphorschirm und auf dem CCD-Chip

Daraus ergibt sich eine Gesamtempfindlichkeit η_{ges} des Systems von:

$$\eta_{ges} = \eta_g \eta_q \frac{\eta_{phos}}{\eta_{ccd}} = 10^{-5}. \quad (4.3)$$

Bei der Detektion durch die CCD Kamera entspricht eine Zählrate etwa 6 Elektronen, die im Chip generiert werden. Mit diesen Werten ermittelt man die Zahl von ca.:

$$N_e = \frac{6Z}{\eta_{ges}} = 2 * 10^8 \quad (4.4)$$

erzeugten Elektronen pro Impuls, was einer Energie von $W_e = 1,2 * 10^{-10} \text{ J}$ entspricht.

Das Gitter erfaßt einen Winkel von $\Theta_g = 1,9 * 10^{-4} \text{ sr}$. Die 2° der Halbwertsbreite entsprechen einem Raumwinkel (Rotationssymmetrisch) von $\Theta_R = 0,015 \text{ sr}$. Daraus ergibt sich eine Gesamtenergie W_{ges} von:

$$W_{ges} = \frac{\Theta_R}{\Theta_g} W_e = 10^{-8} \text{ J} \quad (4.5)$$

für die 10. Harmonische, was einer Energiekonversion K_w von

$$K_w = \frac{W_0}{W_{ges}} = 5 * 10^{-7} \quad (4.6)$$

4. Die durchgeführten Experimente

entspricht.

Analog ergibt sich für die 15. Harmonische ein Wert von $K_w = 2 * 10^{-8}$ für die Energiekonversion.

Die Messungen in Palaiseau wurden im Gegensatz zu denen in Essen mit einer Energie von $W_0 = 50$ mJ durchgeführt. Aus der Messung 4.12 ergibt sich daher eine Konversionseffizienz von $K_w = 1,3 * 10^{-6}$ für die 10. Harmonische und von $k_w = 1,2 * 10^{-7}$ für die 15. Harmonische, was in Übereinstimmung mit der Annahme steht, daß bei höheren Intensitäten die Konversionseffizienz zunimmt.

Tabelle 2

Energie(W_0)	10. Harmonische(k_w)	15. Harmonische(k_w)
24 mJ	$5 * 10^{-7}$	$2 * 10^{-8}$
50 mJ	$1,3 * 10^{-6}$	$1,2 * 10^{-7}$

Energiekonversion k_w der 10. und der 15. Harmonischen

Der Fehler in der Berechnung der Energiekonversion ist vor allem durch den relativ hohen Fehler bei der Bestimmung des Quotienten η_{phos}/η_{ccd} gegeben und liegt insgesamt bei etwa einer Größenordnung.

Vergleicht man den Abfall der Energie mit dem Verlauf der theoretischen Werte aufgrund des Modells des bewegten Spiegels, so fällt auf, daß die gemessenen Werte sehr viel langsamer abfallen als erwartet. Der relativistische Parameter a_0 ist gegeben durch:

$$a_0 = \frac{e\lambda}{m_e\omega_0 c^2} \sqrt{\frac{2I}{c\epsilon_0}} \quad (4.7)$$

D.h. bei einer Intensität von $I = 10^{17}$ W/cm² ist $a_0 \approx 0,1$. Auch im Vergleich zu den PIC-Simulationsrechnungen, die etwas höhere Werte vorhersagen liegen die gemessenen Intensitäten höher als theoretisch erwartet. Dies wird vor allem auch dann deutlich, wenn man zusätzlich das Frequenzverhältnis mit $\omega/\omega_p \approx 0,1$ berücksichtigt. Für den Parameter χ (siehe Kapitel 2) ergeben sich damit Werte im Bereich von 10^{-3} . Ein genauer Vergleich mit den PIC-Rechnungen ist aufgrund der unbekannten Plasmadichte nicht möglich.

4.6 Experimente mit zeitlich variierendem Vorimpuls

Um die Abhängigkeit der Erzeugung der höheren Harmonischen von einem Vorplasma zu untersuchen, wurde ein 4 mJ starker Vorimpuls aus dem Hauptimpuls (20 mJ) ausgekoppelt und mit einer Linse auf ca. $100\text{ }\mu\text{m}$ fokussiert. Damit erreicht der Vorimpuls eine Intensität von einigen 10^{14} W/cm^2 . Der prinzipielle Versuchsaufbau ist in Abbildung 4.30 dargestellt. Aufgrund der Geometrie innerhalb der Vakuumkammer (siehe Abbildung 4.5) ergab sich ein relativ hoher Winkel zwischen Vor- und Hauptimpuls. Die Zeitauflösung aufgrund der Geometrie liegt bei ca. 100 fs und ist damit aber noch im Bereich der Laserimpulsdauer. Durch Änderung der Laufstrecke des Vorimpulses läßt sich so eine variable Zeitdifferenz zwischen Vor- und Hauptimpuls einstellen. Der räumliche Überlapp der Laserimpulse konnte mit Hilfe der verwendeten CCD-Kameras eingestellt werden. Bei größerem Zeitvorlauf des Vorimpulses im Bereich von einigen ps tritt zudem bei idealem Überlapp ein sehr starkes grünes Leuchten durch die Erzeugung der 3/2. Harmonischen auf (zur Entstehung der 3/2. Harmonischen siehe z.B. [66]). Den zeitlichen Überlapp erhält man durch die Beobachtung des reflektierten Vorimpulses. Bei einem größeren Vorlauf des Hauptimpulses wird der reflektierte Strahl diffus am Plasma reflektiert. In der Nähe des zeitlichen Nullpunktes steigt die Reflektivität der Targetoberfläche kurz an [67].

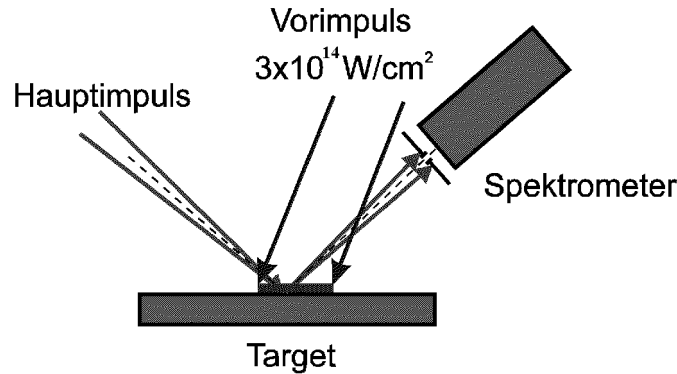


Abbildung 4.30: Versuchsaufbau zur Bestimmung der Intensität der Harmonischen in Abhängigkeit von der Verzögerungszeit des Vorimpulses

Mit diesem Versuch kann nun die Erzeugung der Harmonischen in Abhängigkeit von der Skalenlänge L des Plasmas untersucht werden. Unter der Annahme, daß sich die Elektronendichte N_e bei der Expansion des Plasmas wie:

$$N_e = N_0 e^{-z/L} \quad (4.8)$$

verhält, erhält man bei Verwendung des einfachen isothermischen Modells die Ska-

4. Die durchgeführten Experimente

lenlänge aus [68]:

$$L = v_T \tau = \frac{0,075\lambda}{ps} \tau \quad (4.9)$$

bzw.:

$$\frac{L}{\lambda} = 0,075 \frac{\tau}{ps} \quad (4.10)$$

Darin wurde die thermische Geschwindigkeit der Elektronen $v_T = 6 * 10^6 cm/s$ über folgende Relation berechnet:

$$v_T = \sqrt{\frac{Z k_B T_e}{m_i}} \quad (4.11)$$

Mit dem Ionisationsgrad Z , der Ionenmasse m_i , der Boltzmannkonstante k_B und der Elektronentemperatur T_e , die mit einer Höhe von 100 eV nach dem ersten Impuls angesetzt wurde (siehe [69, 70]).

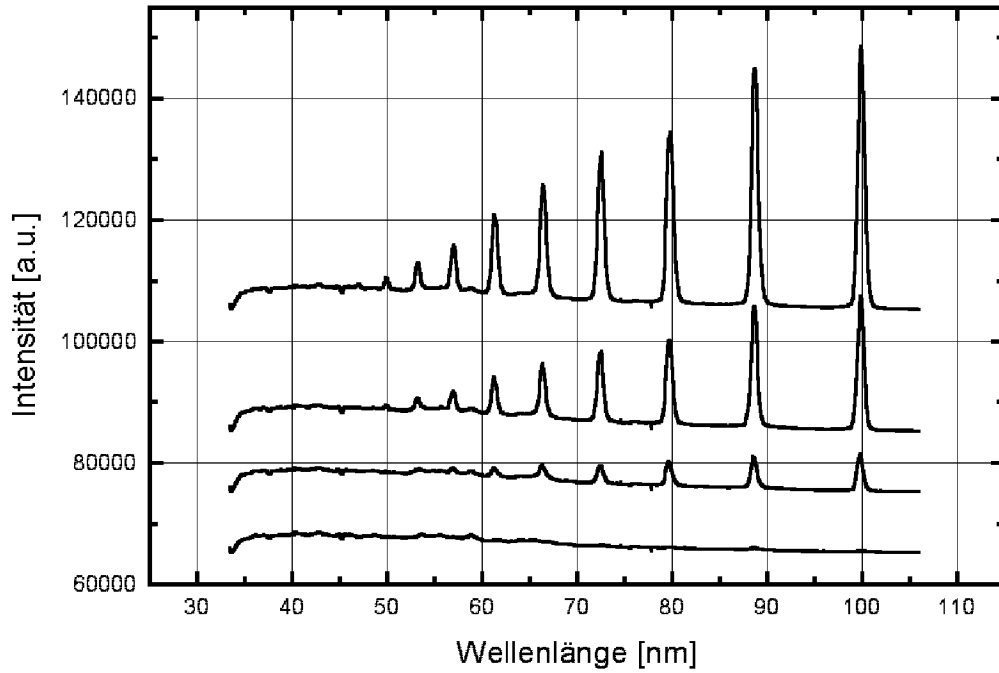


Abbildung 4.31: Änderung der Intensitäten der Harmonischen bei zunehmender Vorlaufzeit des Vorimpulses

Abbildung 4.31 zeigt vier Messungen mit von oben nach unten zunehmender Verzögerungszeit des Vorimpulses. Zur besseren Übersicht wurde auf die oberen Meßreihen eine

4. Die durchgeführten Experimente

Konstante addiert. Man erkennt, daß mit zunehmender Vorlaufzeit die Intensität der Harmonischen abnimmt. Dabei ändert sich der aus Plasmastrahlung bestehende Untergrund innerhalb von 5 ps Vorlaufzeit nicht. Diese Tatsache ermöglicht es, nahezu untergrundfreie Messungen durchzuführen. Dazu muß nur durch die Einführung eines Vorimpulses mit großer Vorlaufzeit bei gleichen Bedingungen eine Hintergrundmessung durchgeführt werden.

Das Diagramm 4.32 zeigt exemplarisch die Intensität der 9. Harmonischen als Funktion der Zeitverzögerung. Dabei wurde die Intensität der 9. Harmonischen ohne Vorimpuls normiert. Die Anwesenheit eines Vorimpuls führt zu einem starken Abfall der Intensität innerhalb von 500 fs auf die Hälfte des ursprünglichen Wertes. Dies entspricht einer Skalenlänge von $0,038 L/\lambda$, was im Widerspruch zu PIC-Simulationen steht, welche einen Anstieg der Intensität in einem Bereich von $0,2 - 0,5 L/\lambda$ erwarten lassen [71].

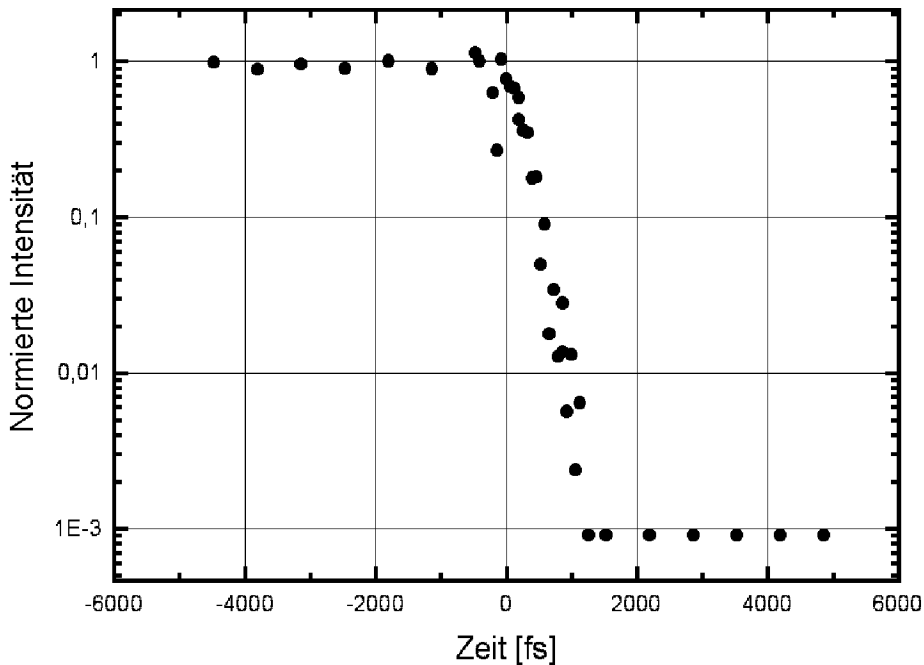


Abbildung 4.32: Intensität der 9. Harmonischen in Abhängigkeit von der Verzögerungszeit des Vorimpulses

Die konstanten Werte nach etwa 1 ps ergeben sich aus der Untergrundstrahlung. Im Bereich der 9. Harmonischen existieren Plasmaemissionslinien, die im Intensitätsbereich von 10^{-3} liegen.

Die theoretischen Berechnungen (siehe Kapitel 2) lassen ein Ansteigen der Intensität der Harmonischen bei abnehmender Plasmadichte erwarten. Durch die Verringerung der Dichte verkleinert sich die Rückstellkraft, was ein Ansteigen der Oszillationsamplituden der Elektronen zur Folge hat. Aus einem Anstieg der Amplituden ergibt sich dann eine

4. Die durchgeführten Experimente

Steigerung in der Intensität. Der experimentell beobachtete starke Abfall in der Intensität kann verschiedene Ursachen haben. Eine Möglichkeit ist, daß es durch den Vorimpuls zu Instabilitäten an der Plasmaoberfläche kommt. Evtl. führen diese Instabilitäten dann dazu, daß die Harmonischen, ähnlich wie in den Versuchen mit längerer Laserimpulsdauer, in einen größeren Raumwinkel abgestrahlt werden. Die Beobachtung der 2. Harmonischen zeigt allerdings, daß eine Richtungsinstabilität erst bei einem Zeitvorsprung des Vorpulses von ca. 10 ps auftritt. Die Richtung der Strahlung bei der doppelten Laserfrequenz variiert dann stark, bis der Strahl bei noch größerem Zeitunterschied der beiden Teilimpulse stark gestreut wird.

4.7 Abhängigkeit vom verwendeten Probenmaterial

In diesem Abschnitt wird die Abhängigkeit der Emission vom Probenmaterial untersucht. Da die Effektivität der Harmonischenstrahlung bei einer Plasmafrequenz von $\omega_p = 2 * \omega_0$ ein Maximum haben sollte, wurde zunächst versucht mit Materialien unterschiedlicher Dichte (poröse Werkstoffe) einen Effekt zu erzielen. Leider zeigte sich bei Messungen mit Silizium und porösem Silizium keine erkennbare Strahlung bei den harmonischen Frequenzen. Ein Vergleich konnte allerdings mit Glas, Aluminium, Titan und Kupfer als Targetmaterialien durchgeführt werden. Bei den Metallproben handelte es sich um jeweils ca. 200 nm dicke Schichten, die auf ein Glassubstrat aufgebracht wurden. Abbildung 4.33 zeigt den Vergleich der Intensitäten der 8. bis zur 14. Harmonischen bei der Änderung des Targetmaterials. Offensichtlich hängt die Effektivität der Harmonischenerzeugung nicht allein von der Dichte des verwendeten Materials ab. Vielmehr wird vermutet, daß auch die Ablationsschwelle der Materialien aufgrund des endlichen Impulskontrastes einen entscheidenden Einfluß auf die Konversionseffizienz hat. Durch den vorhandenen Impulsuntergrund bildet sich, je nach Höhe der Ablationsschwelle, ein vom Probenmaterial abhängiges Vorplasma aus, welches die Bildung der Harmonischen beeinflußt. Als Ursache kommen auch Plasmainstabilitäten an der Targetoberfläche in Betracht. Zu erwähnen ist, daß ausgerechnet das aufgrund der geringen Dichte gerne verwendete Aluminium hier die schlechtesten Resultate zeigt.

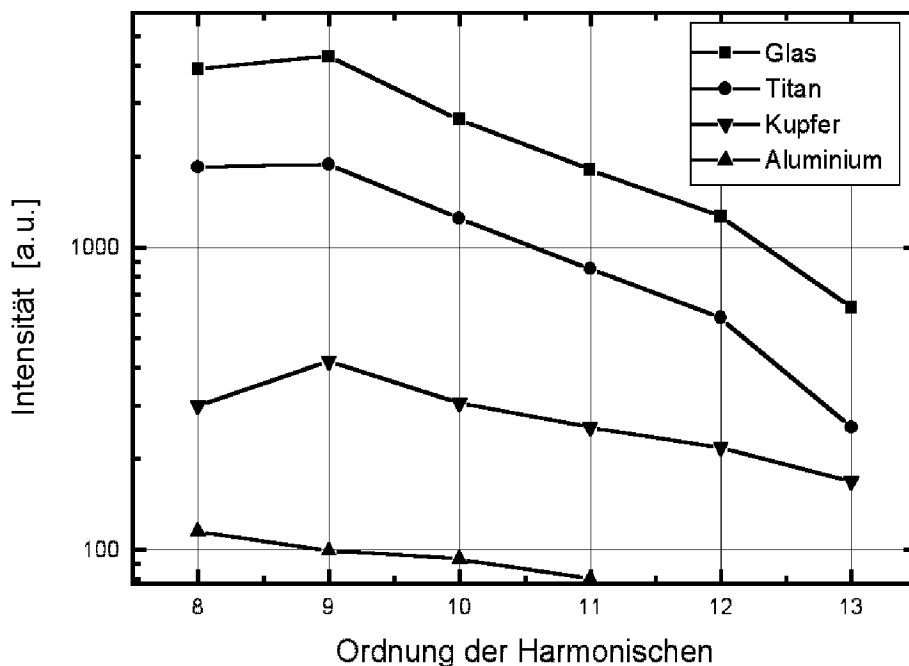


Abbildung 4.33: Vergleich der Intensitäten der verschiedenen Harmonischen bei Änderung des Targetmaterials

5. Zusammenfassung und Ausblick

Dieses Kapitel fasst die erhaltenen Resultate noch einmal zusammen und soll einen Ausblick auf zukünftige Experimente geben.

5.1 Ergebnisse der Arbeit

1.

Mit der Konstruktion des neuen Spektrometers ist es gelungen, die Anzahl der nachgewiesenen Ordnungen in der Erzeugung von Harmonischen an Festkörperoberflächen mit fs-Laserimpulsen zu erhöhen. Unabhängig von der noch nicht eindeutig geklärten Herkunft der Linienemission im Wellenlängenbereich von ca. 20 nm zeigen sich Harmonische auch oberhalb der Plasmafrequenz, so daß keine obere Grenzfrequenz nachgewiesen werden konnte.

2.

Die Emission der Harmonischen erfolgt räumlich stark gebündelt in einen sehr kleinen Winkelbereich in Reflexionsrichtung des eingestrahlt Laserimpulses.

3.

Die Intensitäten für gerade/ungerade Harmonische sind für höhere Ordnungen unterschiedlich. Die Intensität der ungeraden Harmonischen ist dort größer als die der geraden Harmonischen, die im unteren Wellenlängenbereich nicht mehr nachgewiesen werden konnten.

4.

Für die Konversionseffizienzen in die einzelnen Ordnungen ergeben sich Werte, die mit denen bei der Erzeugung von Harmonischen in Gasen vergleichbar sind.

5.

Die Einführung eines Vorimpulses führt zu einem starken Abfall in der Intensität der Harmonischen. Es konnte keine optimale Plasma-Skalenlänge durch die zeitliche Variation des Vorimpulses erzeugt werden, was im Widerspruch zu den PIC-Simulationen steht, die ein Anwachsen in der Intensität der Harmonischen erwarten ließen. Eine mögliche Ursache dafür ist die „Zerstörung des bewegten Spiegels“ durch Oberflächeninstabilitäten des Plasmas.

6.

Die Messung mit unterschiedlichen Targetmaterialien zeigt, daß nicht nur die erzeugte Plasmadichte einen großen Einfluß auf die Intensität der Harmonischen hat, sondern daß auch andere Materialeigenschaften wie z.B. die Ablationsschwelle eine Rolle spielen könnten. Da die Impulse nur ein endliches Kontrastverhältnis haben, wird je nach verwendetem Material ein mehr oder weniger starkes Vorplasma erzeugt. Hier sei bemerkt, daß die genaue Plasmadichte bei der Wechselwirkung nicht bekannt ist und man von einer vollständigen Ionisation des Targetmaterials ausgeht.

5.2 Weitere Experimente

Einen weiteren Schritt zu kürzeren Wellenlängen läßt die Möglichkeit der Frequenzverdopplung des anregenden Laserimpulses erwarten. Neben der günstigeren Anfangswellenlänge entsteht durch den nichtlinearen Effekt bei der Frequenzverdopplung ein Laserimpuls, dessen Impulscontrast wesentlich besser ist. Dadurch wird die Entstehung eines Vorplasmas verhindert, was z.B. die Bildung von Instabilitäten an der Plasma-Vakuum-Grenzfläche verringert. Zur Zeit wird die Laseranlage in Essen umgebaut, so daß nach der Fertigstellung Laserimpulse mit weit höherer Energie zur Verfügung stehen werden. Damit ergibt sich die Möglichkeit nach der Frequenzverdopplung Laserimpulse mit der gewünschten Intensität und verbessertem Impulscontrast zu erzeugen.

Zur Überwachung der Impulsqualität wird das in Kapitel 3 kurz angesprochene FROG-Verfahren verbessert. Durch gezielte Veränderung der Impulseigenschaften kann dann die Auswirkung auf die Erzeugung von Harmonischen untersucht werden.

Prinzipiell besteht die Möglichkeit auf den Einsatz des Phosphorschirms zu verzichten. Aufgrund der verbesserten Empfindlichkeit des Detektionssystems sollte dann ein weiterer Fortschritt in der Untersuchung der Wellenlängenemissionen im Bereich um 20 nm möglich sein. Diese Messung verlangt allerdings eine sehr hohe Sorgfalt und eine sichere Überwachung des benötigten Aluminiumfilters. Wird dieser z.B. bei der Evakuierung der Experimentierkammer zerstört, so besteht die Gefahr von irreparablen Schäden auf dem CCD-Chip der verwendeten Kamera.

Da die Untersuchung von porösen Festkörpermaterialeien nicht den gewünschten Aufschluß über den Einfluß der Festkörperdichte auf die Emission der Harmonischen ermöglichte, ergibt sich evtl. durch die systematische Untersuchung von verschiedenen Metallproben eine Möglichkeit näheren Aufschluß darüber zu erhalten. Für eine steigende Plasmadichte sagen die theoretischen Modelle aufgrund der höheren Rückstellkräfte einen Rückgang in der Oszillationsamplitude und damit in der Intensität der Harmonischen voraus. Nun zeigt der Vergleich der Targetmaterialien, daß gerade bei dem oft verwendeten leichten Aluminium die Emission bei den Vielfachen der Grundfrequenz vergleichsweise niedrig ausfällt.

Ein starkes Ansteigen in der Intensität der generierten Harmonischen ist ab einem Intensitätsbereich von 10^{18} W/cm^2 zu erwarten. In diesem Bereich steigt der Druck aufgrund der ponderomotorischen Kraft an, und ein genaueres Verständnis der an der Oberfläche des Plasmas entstehenden Instabilitäten wird notwendig. Genaueren Aufschluß darüber sollten detaillierte Vorimpulsmessungen in Verbindung mit der Untersuchung der Plasmaoberfläche sowie der Kohärenzeigenschaften der höheren Harmonischen ergeben.

Ein weiterer noch nicht untersuchter Punkt ist die Polarisierung der entstehenden Harmonischen. Die entwickelten Modelle sagen Polarisierungseigenschaften der Harmonischen voraus, welche mit dem Experiment verglichen werden sollten. Dieses Experiment ist nicht trivial und erfordert einen größeren Umbau der Vakuumanlage. Eine Möglichkeit zur Bestimmung der Polarisierung im VUV-Bereich ergibt sich durch die verschiedenen Reflexionskoeffizienten der Strahlung bei Reflexion an einer Metalloberfläche.

5.3 Ausblick

Der Brechungsindex eines Plasmas ergibt sich aus der sogenannten Ecclesschen Beziehung [72]:

$$n = \sqrt{1 - \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2}}. \quad (5.1)$$

Darin ist ω_p die Plasmafrequenz mit:

$$\omega_p = \sqrt{\frac{n_e e^2}{m_e \epsilon_0}} \quad (5.2)$$

Wird die Plasmafrequenz größer als die Laserfrequenz ω_0 , so wird der Brechungsindex imaginär und die Welle wird beim Eintritt in das Plasma reflektiert. Für $\omega_p = \omega_0$ spricht man von der kritischen Wellenlänge ω_{cr} (siehe Kapitel 2).

Daraus resultiert eine Anwendung der höheren Harmonischen. Will man die Elektronendichte n_e eines Plasmas zeitabhängig messen, so kann man dies über die Relation 5.1 durch das Bestimmen der kritischen Wellenlänge erreichen. Theobald et. al. [73, 74] verwendeten dazu höhere Harmonische, die im Edelgas erzeugt wurden und konnten damit den zeitlichen Verlauf der Elektronendichte in einem Plasma verfolgen. Indem sie mittels Zeitverzögerung die Transmission der Harmonischen durch das Plasma bestimmten, ließ sich auf die Elektronendichte schließen. Bei einem weiteren Experiment wurden Folientargets benutzt, bei denen ein Abbrechen der transmittierten Harmonischen beobachtet wurde [75].

Ein weiterer interessanter Punkt bei der Erzeugung hoher Harmonischer an Festkörperoberflächen ist das Entstehen von sogenannten Attosekundenimpulsen [76, 77]. Geht man einmal kurz zu dem besprochenen Modell des bewegten Spiegels zurück, so erscheint die an der bewegten Oberfläche reflektierte Welle verformt. Diese Verformung ist umso stärker je größer die Anzahl der erzeugten Harmonischen ist. Die Form der reflektierten Welle hängt stark von der Phasenlage der einzelnen Spektralkomponenten ab. Für eine geeignete Phasenlage einer ehemals sinusförmig einfallenden Welle entsteht eine Serie von extrem kurzen Impulsen, deren Zeitdauer kürzer als ein optischer Zyklus der fundamentalen Wellenlänge ist.

Bild 5.1 zeigt die Intensität der einfallenden Welle (gepunktete Linie), die proportional zu $(\cos \omega_0 t)^2$ ist. Die gestrichelte Linie und die durchgezogene Linie zeigen die sich ergebene Wellenform für $\chi = 0,5$ bzw. $\chi = 0,9$ (siehe Kapitel 2).

In diesem Beispiel sind die einfallende Welle und die Bewegung des oszillierenden Spiegel genau um π phasenverschoben. Für den stark relativistischen Fall von $\chi = 0,9$ und einer Wellenlänge von 800 nm wird eine Impulslänge von $8 \cdot 10^{-17}$ s, d.h. von 80 Attosekunden erreicht.

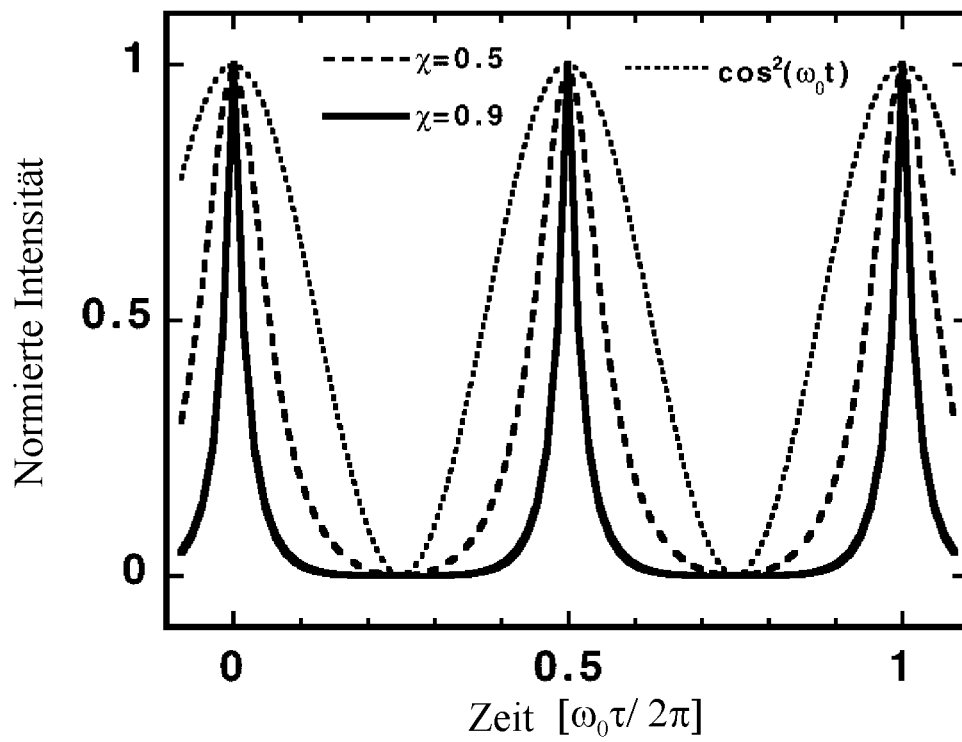


Abbildung 5.1: Entstehung einer Serie von Attosekundenimpulsen

Literaturverzeichnis

- [1] B.Sonntag and P.Zimmermann. *Photoionisation ausgerichteter Atome mit Synchrotronstrahlung*. *Phys.Bl.*, **51** (4):279, 1995.
- [2] J.Roßbach. *Ein FEL im weichen Röntgenbereich bei DESY*. *Phys.Bl.*, **51** (4):283, 1995.
- [3] J.Feldhaus and B.Sonntag. *The Vacuum Ultraviolet Free-Electron-Laser at DESY*. *Synchrotron Radiation News*, **11** (1):14, 1998.
- [4] R.Sigel. *Wann kommt der Röntgenlaser?* *Phys. Bl.*, **48** (10):808, 1992.
- [5] J.J.Rocca, V.Shlyaptsev, F.G.Tomasel, O.D.Cortazar, D.Hartshorn, and J.L.-A.Chilla. *Demonstration of a discharge pumped table-top soft-x-ray laser*. *Phys. Rev. Lett.*, **73** (16):2192, 1994.
- [6] B.E.Lemoff, G.Y.Yin, C.L.Gordon III, C.P.J.Barty, and S.E.Harris. *Demonstration of a 10 – Hz Femtosecond-Pulse-Driven XUV Laser at 41,8nm in Xe IX*. *Phys. Rev. Lett.*, **74** (9):1574, 1995.
- [7] P.V.Nickles, V.N.Shlyaptsev, M.Kalachnikov, M.Schnürer, I.Will, and W.Sandner. *Short Pulse x-ray Laser at 32,6nm based on transient gain in Ne-like Titanium*. *Phys. Rev. Lett.*, **78** (14):2748, 1997.
- [8] D.V.Korobkin, C.H.Nam, and S.Suckewer. *Demonstration of soft x-ray lasing to ground state in LiIII*. *Phys. Rev. Lett.*, **77** (26):5206, 1996.
- [9] M.Gravila (Hrsg.). *Atoms in Intense Fields*. Formula No. 8.511.3 bzw. 8.511.4. Academic Press, Boston, 1992.
- [10] A. L Huiller, K.J.Schafer, and K.C.Kulander. *Theoretical aspects of intense field harmonic generation*. *J. Phys. B*, **24** :3315, 1991.
- [11] Z.Chang, A.Rundquist, H.Wang, M.M.Murnane, and H.C.Kapteyn. *Generation of coherent soft x-rays at 2.7nm using high harmonics*. *Phys. Rev. Lett.*, **79** (16):2967, 1997.
- [12] S.Kohlweyer, G.D.Tsakiris, Wahlström, C.Tillman, and I.Mercer. *Harmonic generation from solid-vacuum interface irradiated at high laser intensities*. *Opt. Comm.*, **117** :431, 1995.
- [13] D.von der Linde, T.Engers, G.Jenke, P.Agostini, G.Grillon, E.Nibbering, A.Mysyrowicz, and A.Antonetti. *Generation of high-order harmonics from solid surfaces by intense femtosecond laser pulses*. *Phys. Rev. A*, **52** (1):R25, 1995.
- [14] D.von der Linde, T.Engers, G.Jenke, P.Agostini, G.Grillon, E.Nibbering, J.-P.Chambaret, P.F.Curley, A.Mysyrowicz, and A.Antonetti. *Generation of high-order harmonics from solid surfaces by intense femtosecond laser pulses*. *Ultrafast Processes in Spectroscopy*, Plenum Press, New York, page 319, 1996.

- [15] R.Carman, C.Rhodes, and R.Benjamin. *Observation of harmonics in the visible and ultraviolet created in CO₂-Laser-produced plasmas* . *Phys. Rev.A*, **24** (5):2649, 1981.
- [16] R.Carman, D.Forslund, and J.Kindel. *Visible Harmonic Emission as a way of measuring profile steepening* . *Phys. Rev. Lett.*, **46** (1):29, 1981.
- [17] P.A.Norreys, M.Zepf, S.Moustazis, A.P.Fews, J.Zhang, P.Lee, M.Bakarezos, C.N. Danson, A.Dyson, P.Gibbon, P.Loukakos, D.Neely, F.N. Walsh, J.S.Wark, and A.E.Dangor. *Efficient extreme UV harmonics generated from picosecond laser pulse interactions with solid targets* . *Phys. Rev. Lett.*, **76** :1832, 1996.
- [18] B.Bezzerides, R.D.Jones, and D.w.Forslund. *Plasma mechanism for ultraviolet harmonic radiation due to intense CO₂ light*. *Phys. Rev. Lett.*, **49** :202, 1982.
- [19] R.Lichters, J.Meyer ter Vehn, and A.Pukhov. *Short-pulse laser harmonics from oscillating plasma surfaces driven at relativistic intensity*. *Phys. Plasmas*, **3** (9):3425, 1996.
- [20] M.Murnane, H.C.Kapteyn, M.D.Rosen, and R.W.Falcone. *Ultrafast X-ray pulses from laser-produced plasmas*. *Science*, **251** :531, 1991.
- [21] S.C.Wilks and W.L.Kruer. *Absorption of ultrashort, ultra intense Laser light by solids and overdense plasmas*. *IEEE Journal Of Quantum Electronics*, **33** (11):1954, 1997.
- [22] Z.Chang, A.Rundquist, J.Zhou, H.C.Kapteyn, M.M.Murnane, X.Liu, B.Shan, and J.Liu. *Experimental demonstration of a subpicosecond x-ray streak camera* **Ultrafast Phenomena X Band 62**. Springer Verlag, Heidelberg, 1996.
- [23] L.von Hamos. *Formation of true x-ray images by reflection on cristal mirrors*. *Zeitschr. f. Kristallographie*, **101** :17, 1938.
- [24] R.W.Schoenlein, W.P.Leemans, A.H.Chin, P.Volfbeyn, T.E.Glover, P.Balling, M.Zolotorev, K.-J.Kim, S.Chattopadhyay, and C.V.Shank. *Femtosecond x-ray pulses at 0.4Å generated by 90° Thomson Scattering: A tool for probing the structural dynamics of materials* . *Science*, **274** :236, 1996.
- [25] C.Rischel, A.Rousse, I.Uschmann, P.A.Albouy, J.P. Geindre, P.Audebert, J.C. Gauthier, E.Förster, J.L.Martin, and A.Antonetti. *Femtosecond time-resolved x-ray diffraction from laser-heated organic films*. *Nature*, **390** :531, 1997.
- [26] J.Larsson, P.A.Heimann, A.M.Lindenberg, P.J.Schuck, P.H.Bucksbaum, R.W.Lee, H.A.Padmore, J.S.Wark, and R.W.Falcone. *Ultrafast structural changes measured by time-resolved x-ray diffraction*. *Appl. Phys. A*, **66** :587, 1998.
- [27] C.Rose-Petruck, R.Jimenez, T.Guo, A.Cavalleri, C.W.Siders, F.Raksi, J.A.Squier, B.C. Walker, K.R.Wilson, and C.P.J.Barty. *Picosecond-milliångström lattice dynamics measured by ultrafast x-ray diffraction*. *Nature*, **398** :310, 1999.

- [28] A.H.Chin and et al. **Ultrafast Phenomena XI** . Springer Verlag, Heidelberg, 1998.
- [29] C.W.Siders, A.Cavalleri, K.Sokolowski-Tinten, C.Tóth, T.Guo, M.Kammler, M.Horn von Hoegen, K.R.Wilson, D.von der Linde, and C.P.J.Barty. *Detection of non-thermal melting by ultrafast x-ray diffraction. Science*, 1999.
- [30] C.W.Siders, A.Cavalleri, K.Sokolowski-Tinten, T.Guo, C.Tóth, R.Jimenez, C.Rose-Petruck, D.von der Linde, K.R.Wilson, and C.P.J.Barty. *Ultrafast movies of atomic motion with femtosecond laser-based x-rays. SPIE proceedings*, **3776**, 1999.
- [31] C.Greggori, V.K.Teripathi, and H.H.Chen. *Harmonic generation of radiation in a steep density profile. Phys. Fluids*, **26** :1904, 1982.
- [32] J.Zhang, M.Zepf, P.A.Norreys, A.E.Dangor, M.Bakarezos, C.N.Danson, A.Dyson, A.P.Fews, P.Gibbon, M.H.Key, P.Lee, P.Loukakos, S.Moustazis, D.Neely, F.N.Walsh, and J.S.Wark. *Coherence and bandwidth measurements of harmonics generated from solid surfaces irradiated by intense picosecond laser pulses. Phys. Rev. A*, **54** :1597, 1996.
- [33] P.Gibbon. *Harmonic generation by femtosecond laser-solid interaction: a coherent „water-window“ light source? Phys. Rev. Lett.*, **76** :50, 1996.
- [34] D.von der Linde and K.Rzàzewski. *High-order optical harmonic generation from solid surfaces. Appl. Phys. B*, **B63** :499, 1996.
- [35] S.V.Bulanov and N.M.Naumova. *Interaction of an ultrashort, relativistically strong laser pulse with an overdense plasma. Phys. Plasmas*, **1** :745, 1994.
- [36] W.Lauterborn, T.Kurz, and M.Wiesenfeld. Springer-Verlag, Berlin, 1993.
- [37] I.S.Gradstein and I.M.Ryzhik. *Table of integrals, series and products* . Academic Press, Boston, 1965.
- [38] E.M.Lifschitz L.D.Landau. *Klassische Feldtheorie*, volume II of *Lehrbuch der theoretischen Physik*. Akademie-Verlag, Berlin, 1989.
- [39] S.Kohlweyer. *Erzeugung von Harmonischen durch Reflektion hochintensiver Laserpulse an einem überdichten Plasma* . Dissertation, Max-Planck-Institut für Quantenoptik und TU München, 1996.
- [40] S.V.Bulanov, N.M.Naumova, and F.Pegoraro. *Interaction of an ultrashort, relativistically strong laser pulse with an overdense plasma. Phys. Plasmas*, **1**:745, 1994.
- [41] H.Hora. *Physics of Laser driven plasmas. John Wiley & Sons* , New York, 1981.
- [42] J.N.Bardsley, B.M.Penetrante, and M.H.Mittleman. *Relativistic dynamics of electrons in intense laser fields. Phys. Rev. A*, **48** :3823, 1989.
- [43] J.D.Jackson. *Klassische Elektrodynamik. Walter de Gruyter, Berlin*, 1983.

- [44] H.Goldstein. *Klassische Mechanik*. Aula-Verlag, Wiesbaden, 1991.
- [45] P.Sprangle, E.Esarey, and A.Ting. *Nonlinear interaction of intense laser pulses in plasmas*. *Phys. Rev. A*, **41** :4463, 1990.
- [46] Z.Sheng, J.Ma, Z.Xu, and W.Yu. *Effect of an electron plasma wave on the propagation of an ultrashort laser pulse*. *J. Opt. Soc. Am.B*, **10** :122, 1993.
- [47] S.Wilks, W.Kruer, and W.Mori. *Odd harmonic generation of ultra-intense laser pulses reflected from an overdense plasma*. *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **21** (1):120, 1993.
- [48] R.Lichters and J.Meyer ter Vehn. *High Laser Harmonics from Plasma Surfaces: Intensity and Angular Dependence, Cutoffs and Resonance Layers at Density Ramps*. *Inst. Phys. Conf. Ser.*, **154** :221, 1997.
- [49] D.von der Linde and H.Schüler. *Breakdown threshold and plasmaformation in femtosecond laser-solid interaction*. *J Opt. Soc. Am. B*, **13** (1):216, 1996.
- [50] S.Bachus, C.G.Durfee III, M.M.Murnane, and H.C.Kapteyn. *High-power ultrafast lasers*. *Rev. Sci. Inst.*, **69** (3):1207, 1998.
- [51] H.Wilhelmi. Akademie-Verlag, Berlin, 1984.
- [52] S.P.Le Blanc and R.Sauerbrey. *Ultrashort pulse characterisation using plasma induced cross-phase modulation*. *Opt. Com.*, **111** :297, 1994.
- [53] J.L.A.Chilla and O.E.Martinez. *Direct determination of the amplitude and phase of femtosecond light pulses*. *Opt. Lett.*, **16** :39, 1991.
- [54] J.C.Garreau, J.A.Levenson, and I.Abram. *Simple method for laser chirp diagnosis: application to the measurement of the YLF nonlinear kerr coefficient*. *Opt. Com.*, **144** :155, 1995.
- [55] J.Paye, M.Ramaswang, J.G.Fujimoto, and E.P.Ippen. *Measurement of the amplitude and phase of ultrashort light pulses from spectrally resolved autocorrelation*. *Opt. Lett.*, **18** :1946, 1993.
- [56] K.L.Sala, G.A.Kenny Wallace, and G.E.Hall. *CW autocorrelation measurements of picosecond Laser pulses*. *IEEE J. Quant. Electr.*, **16** :990, 1980.
- [57] R.Trebino and D.J.Kane. *Using phase retrieval to measure the intensity and phase of ultrashort pulses: frequency-resolved optical gating*. *J. Opt. Soc. Am. A*, **10** :1101, 1993.
- [58] Y.R.Shen. *The Principles of Nonlinear Optics*. John Wiley & Sons, Inc., New York, 1984.
- [59] H.Römer. *Konzepte der Theoretischen Physik*. VCH, Weinheim, 1994.
- [60] C.Bond and A.Cyril. *How to align an off-axis parabolic mirror*. *SPIE*, **1113** , 1989.

- [61] B.L.Henke, E.M.Gullikson, and J.C. Davis. *X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission and reflection at $E = 50 - 30000\text{eV}$, $Z = 1 - 92$. Atomic Data and Nuclear Data Tables*, **54** (2):182, 1993.
- [62] U.Teubner, D.Altenbernd, P.Gibbon, E.Förster, A.Mysyrowicz, P.Audebert, J.-P.Geindre, R.Lichters, and J.Meyer ter Vehn. *Observation of VUV radiation at wavelengths in the ω_p - and $2\omega_p$ - wavelength range emitted from femtosecond laser-plasmas. Opt. Comm.*, **144** :217, 1997.
- [63] J. Hollandt, M.Kühne, and B.Wende. *High-current hollow-cathode source as a radiant intensity standard in the 40-125 nm wavelength range. Appl.Opt.*, **33** :68, 1994.
- [64] J. Hollandt. *Strahlungsnormale für die solare Spektroradiometrie im Vakuum-UV. Dissertation*, 1994.
- [65] Yuelin Li, G.D.Tsakiris, and R.Sigel. *Self-calibration of a thinned, backside illuminated charge coupled devices in the soft x-ray region. Rev. Sci. Instr.*, **66** (1):80, 1995.
- [66] P.D.Carter, S.M.L.Sim, and E.R.Wooding. *Mechanisms for three-halves harmonic emission from laser-produced plasma. Opt. Com.*, **32** (3):443, 1980.
- [67] T.Engers. *Wechselwirkung intensiver Femtosekunden-Lichtimpulse mit inhomogenen Laserplasmen*. 1994.
- [68] W.L.Kruer. *The physics of laser plasma interaction*. Addison Wessley Redwood City, 1988.
- [69] J.C.Gauthier, J.P.Geindre, P.Audebert, S.Bastiani, C.Quoix, G.Grillon, A.Mysyrowicz, A.Antonetti, and R.C.Mancini. *Theoretical and experimental studies of laser-produced plasmas driven by high-intensity femtosecond laser pulses. Phys. Plasmas*, **4** (5):1811, 1997.
- [70] R.V.Volkov, V.M.Gordienko, S.A.Magnitskii, P.G.Oganian, P.A.Oleinikov, V.T.-Platonenko, and A.P.Tarasevitch. *Evolution of a high-temperature femtosecond surface plasma, recorded with time resolution. Quantum Elec.*, **25** (9):877, 1995.
- [71] M.Zepf, G.D.Tsakiris, G.Pretzler, I.Watts, D.M.Chambers, P.A.Norreys, U.Andiel, A.E.Dangor, K.Eidman, C.Gahn, A.Machacek, J.S.Wark, and K.Witte. *Role of the plasma scale length in the harmonic generation from solid targets. Physical Review E*, **58** (5):R5253, 1998.
- [72] H.Stöcker. *Taschenbuch der Physik. Verlag Harri Deutsch, Thun und Frankfurt am Main*, 1998.
- [73] W.Theobald, R.Häßner, C.Wülker, and R.Sauerbrey. *Temporally resolved measurement of electron densities $> 10^{23}\text{cm}^3$ with high harmonics. Phys. Rev. Lett.*, **77** :298, 1996.

- [74] W.Theobald, R.Häßner, R.Kingham, R.Sauerbrey, R.Fehr, D.O.Gericke, M.Schlanges, W.-D.Kraeft, and K.Ishikawa. *Electron densities, temperatures and the dielectric function of femtosecond-laser-produced plasmas.* *Phys. Rev. E*, **59** (3):3544, 1999.
- [75] R.Häßner, W.Theobald, S.Niedermeier, H.Schillinger, and R.Sauerbrey. *High-order harmonics from solid target as a probe for high-density plasmas.* *Opt. Let.*, **22** (19):1491, 1997.
- [76] D.von der Linde. *Generation of high order optical harmonics from solid surfaces.* *Appl. Phys. B*, **68** :1, 1999.
- [77] V.T.Platonenko and V.V. Strelkov. *Spatiotemporal structure of the combined field of high-order harmonics and generation of attosecond pulses.* *Quantum Elec.*, **27** (9):779, 1997.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die mir bei der Fertigstellung dieser Arbeit geholfen haben.

Herrn Prof. Dr. D. von der Linde danke ich für die Möglichkeit, diese Arbeit in seiner Arbeitsgruppe durchführen zu können.

Herrn Dr. A. Tarasevitch danke ich für die hervorragende Arbeit am Essener Lasersystem und für die gute Zusammenarbeit im Labor, sowohl in Essen wie in Palaiseau.

Bei Herrn Dr. K. Sokolowski-Tinten bedanke ich mich für hilfreiche Diskussionen und für das Korrekturlesen dieser Arbeit.

Den Herren Dipl. Phys. C. Dietrich und Dipl. Phys. C. Blome danke ich für die freundliche Unterstützung bei der Arbeit am Essener Lasersystem.

Herrn Dipl. Phys. G. Jenke danke ich für die gute Zusammenarbeit im Labor.

Herrn M. Bieske möchte ich für die sorgfältige Ausführung der notwendigen feinmechanischen Arbeiten danken.

Für die Arbeit im elektronischen Bereich bedanke ich mich bei Herrn Dipl. Ing. B. Proff.

Allen Mitarbeitern dieser Arbeitsgruppe danke ich für die jederzeit freundliche Unterstützung.

Weiterer Dank gilt den Herren Dr. U. Teubner, Dipl. Phys. D. Klöpfel und Dipl. Phys. U. Wagner von der Universität Jena sowie Herrn Dr. P. Balcou aus Palaiseau für ihre Mitarbeit am Experiment in Palaiseau.

Nicht zuletzt danke ich allen, die mir durch das Korrekturlesen dieser Arbeit geholfen haben.